

PATENT COOPERATION TREATY

10/089143

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

**NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT**

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

Date of mailing (day/month/year)

04 July 2002 (04.07.02)

BRANDENBURG, Thomas
Frankfurter Str. 68
53773 Hennef
ALLEMAGNE

Applicant's or agent's file reference

Alc 5/PCT

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.

PCT/DE00/03409

International filing date (day/month/year)

29 September 2000 (29.09.00)

International publication date (day/month/year)

12 April 2001 (12.04.01)

Priority date (day/month/year)

06 October 1999 (06.10.99)

Applicant

ALCERU SCHWARZA GMBH et al

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
06 Octo 1999 (06.10.99)	199 47 908.9	DE	08 Marc 2002 (08.03.02)
15 Octo 1999 (15.10.99)	199 49 727.3	DE	08 Marc 2002 (08.03.02)

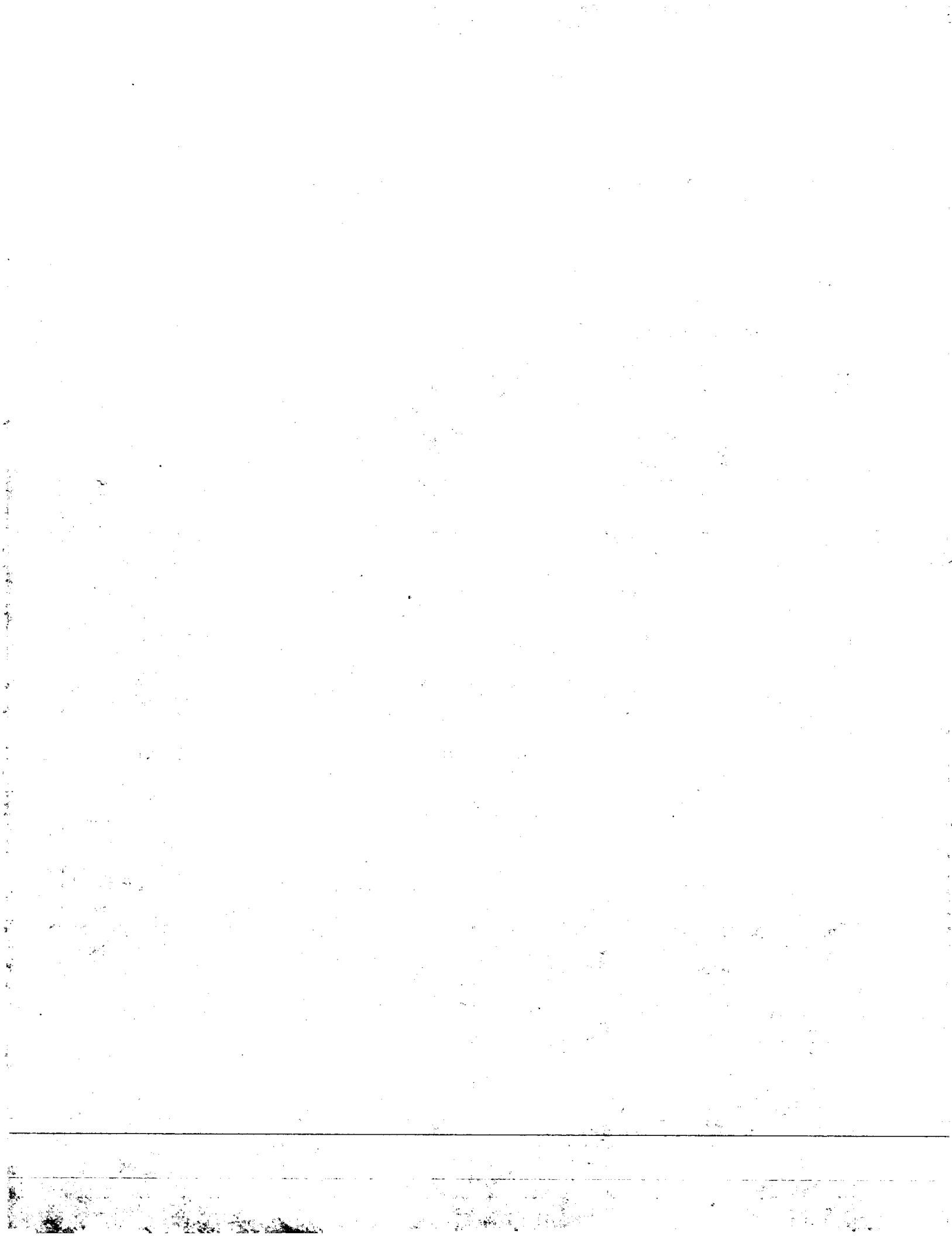
The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Hans LEISE

Telephone No. (41-22) 338.83.38



paw
**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
 AUF DEM GEBIET DES PATENTWEISSENS**

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts A1c 5/PCT	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/ 03409	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 29/09/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 06/10/1999
Anmelder ALCERU SCHWARZA GMBH et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 02 Blätter.

Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
 - Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.
- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das
 - in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.
 - zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
 - bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
 - bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
 - Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
 - Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).
 3. Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

- wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.
- wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

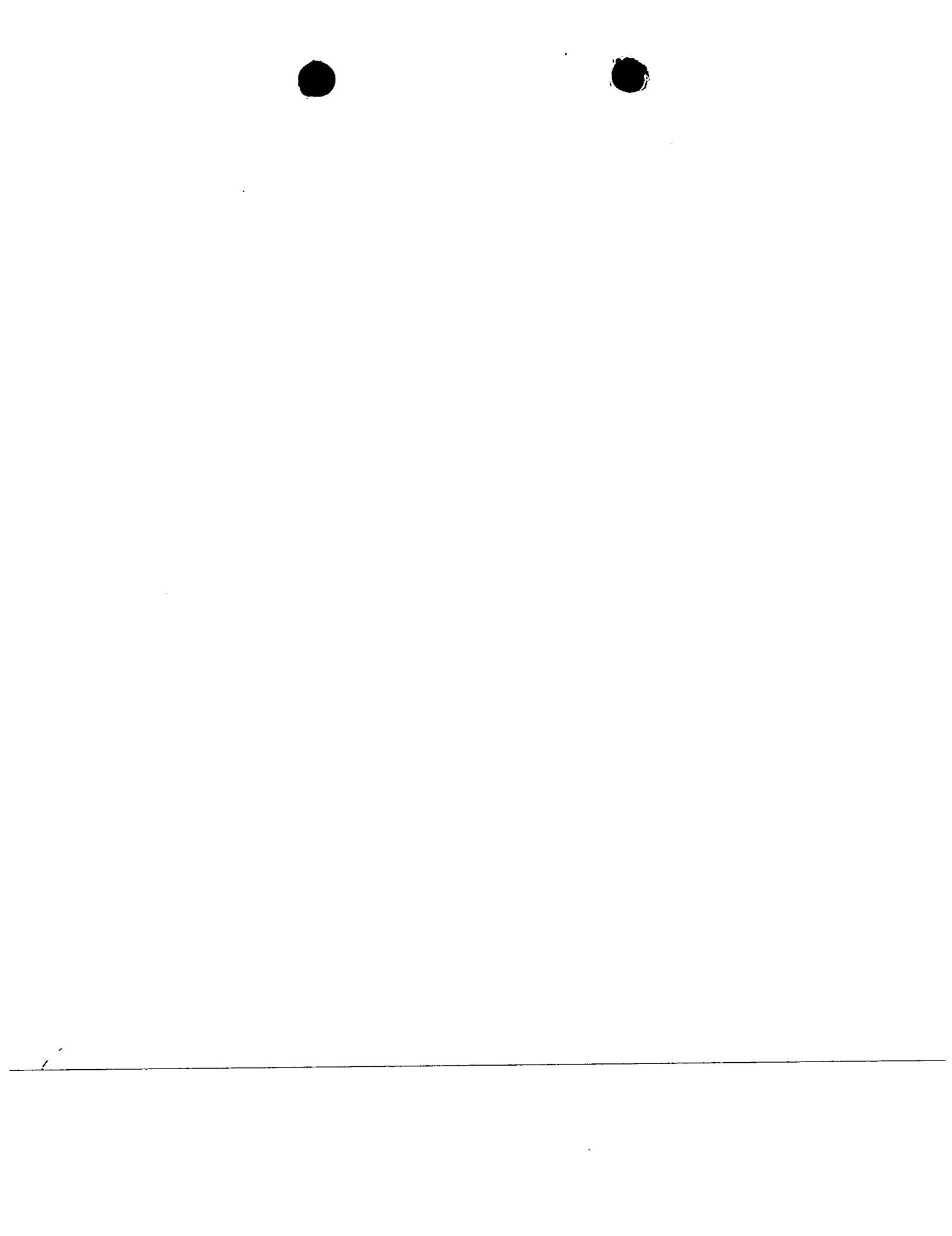
5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

- wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.
- wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

- wie vom Anmelder vorgeschlagen
- weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.
- weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

 keine der Abb.



Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

10/089143

7

Applicant's or agent's file reference Alc 5/PCT	FOR FURTHER ACTION	See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/DE00/03409	International filing date (<i>day/month/year</i>) 29 September 2000 (29.09.00)	Priority date (<i>day/month/year</i>) 06 October 1999 (06.10.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC D01F 2/00		
Applicant ALCERU SCHWARZA GMBH		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.

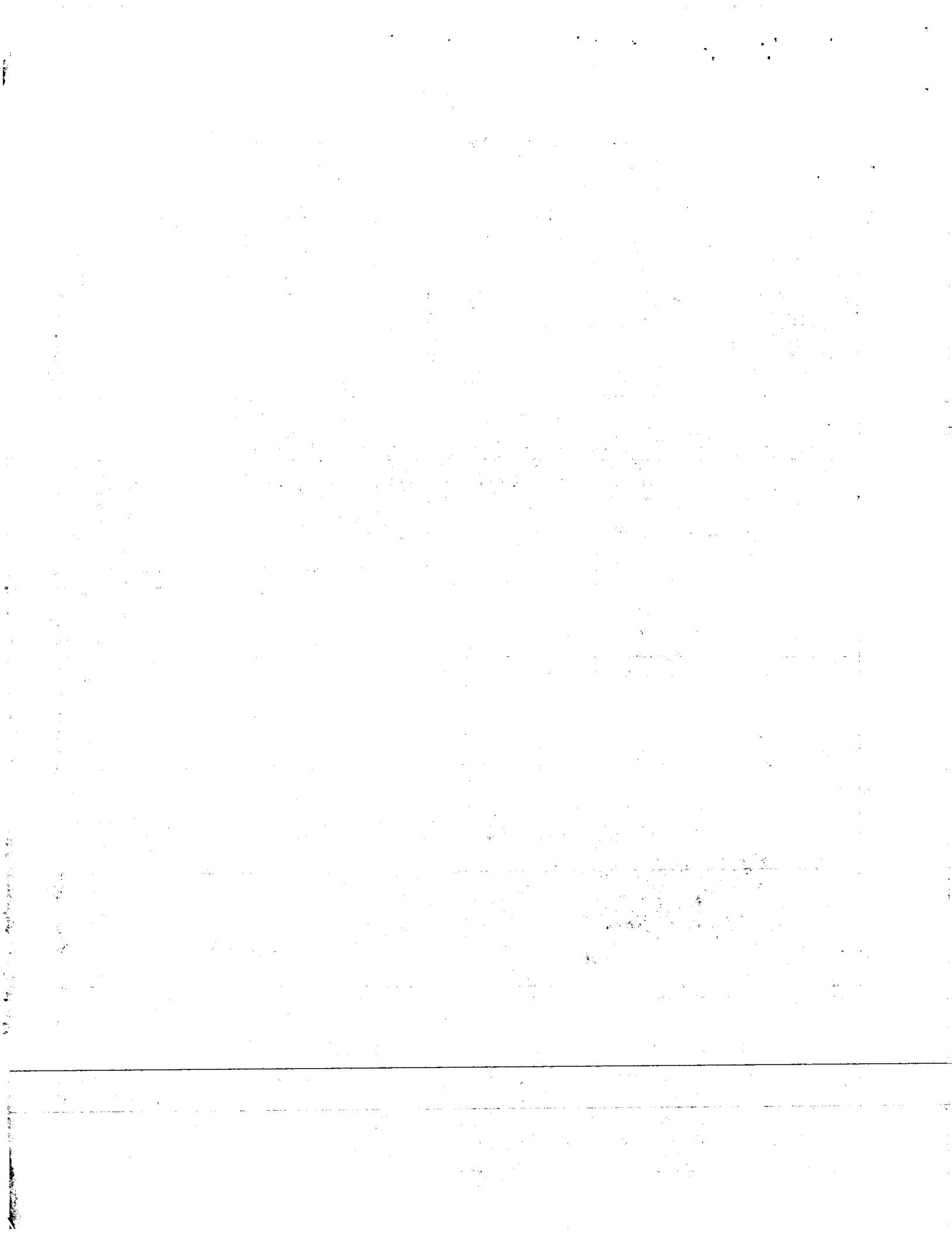
This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 5 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I Basis of the report
- II Priority
- III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV Lack of unity of invention
- V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI Certain documents cited
- VII Certain defects in the international application
- VIII Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 14 April 2001 (14.04.01)	Date of completion of this report 14 January 2002 (14.01.2002)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE00/03409

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

 the international application as originally filed. the description, pages 1,3-7, as originally filed,

pages _____, filed with the demand,

pages 2,2a, filed with the letter of 27 September 2001 (27.09.2001),

pages _____, filed with the letter of _____

 the claims, Nos. _____, as originally filed,

Nos. _____, as amended under Article 19,

Nos. _____, filed with the demand,

Nos. 1-7, filed with the letter of 27 September 2001 (27.09.2001),

Nos. _____, filed with the letter of _____

 the drawings, sheets/fig 1/1, as originally filed,

sheets/fig _____, filed with the demand,

sheets/fig _____, filed with the letter of _____

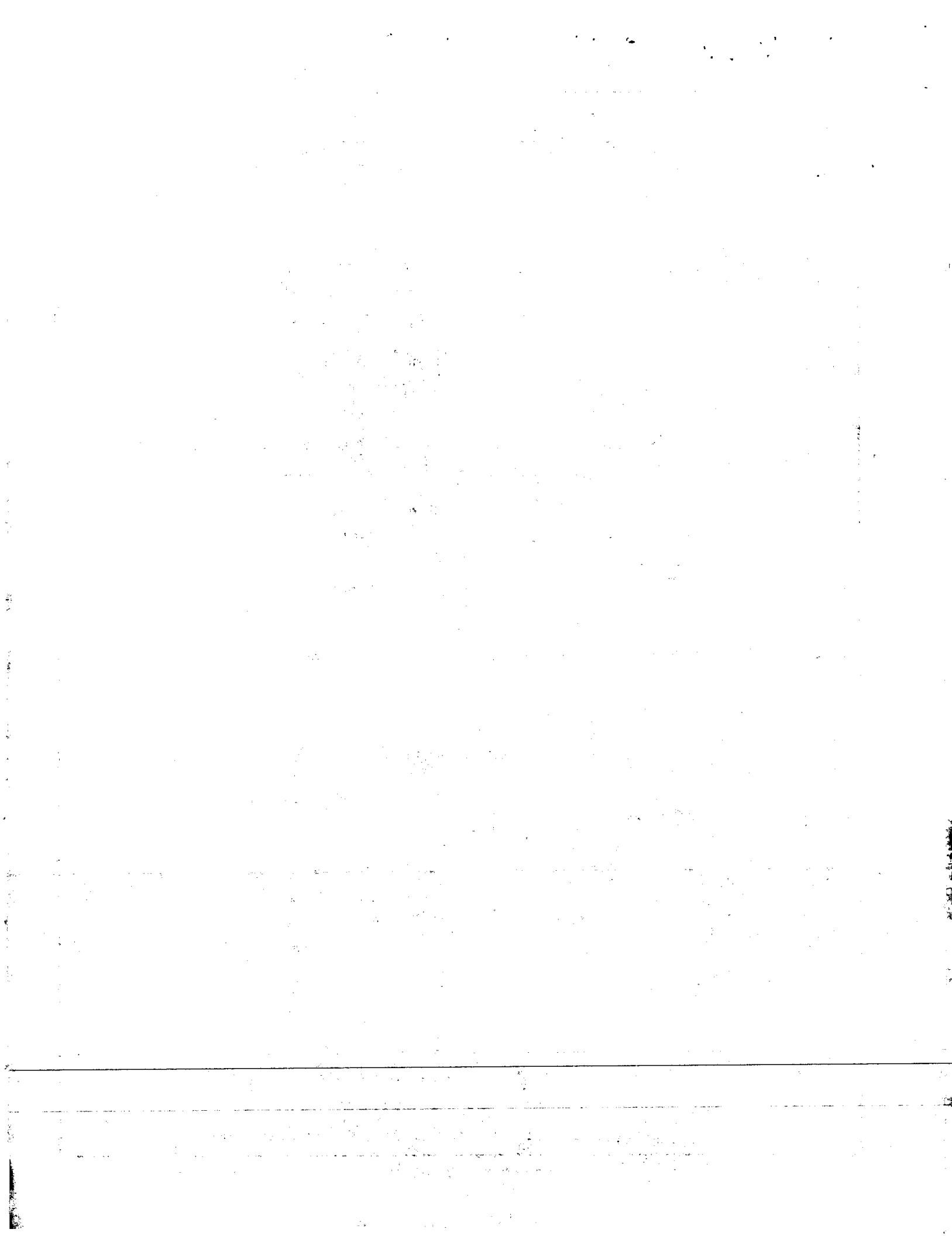
sheets/fig _____, filed with the letter of _____

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

 the description, pages _____ the claims, Nos. _____ the drawings, sheets/fig _____

3. This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No. PCT/DE 00/03409
--

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

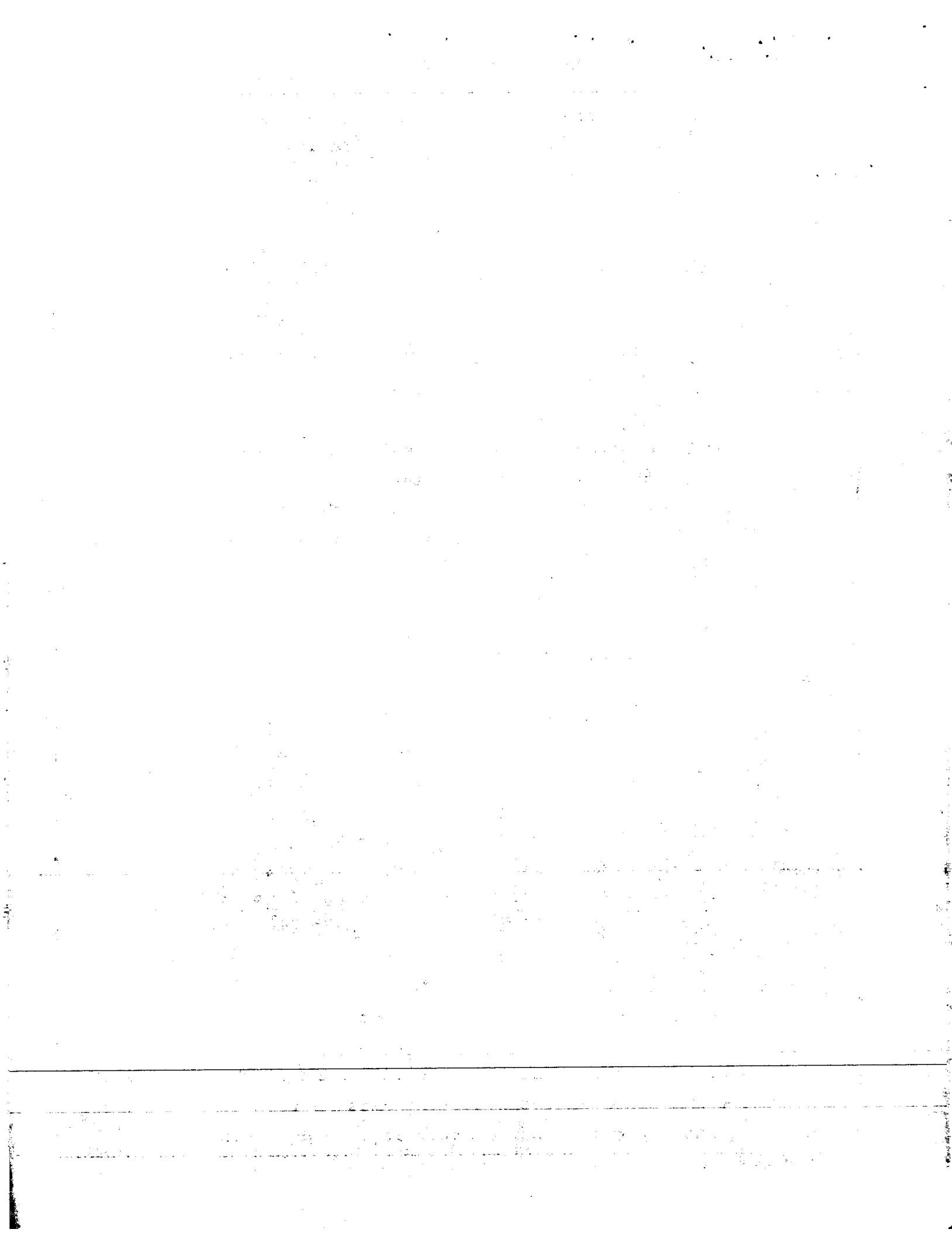
All the method and device features of independent Claims 1 and 6, in particular the regulating variables defined in the characterising parts of said claims, are neither described nor alluded to in the cited prior art.

The criterion of novelty (PCT Article 33(2)) is therefore satisfied.

The subject matter of the application (method and device) also involves an inventive step for the following reasons (PCT Article 33(3)):

A method and a device as per the preambles to the present Claims 1 and 6 are known from D1 (WO-A-94/28212). In contrast to the invention, however, in D1 an optical property, namely the index of refraction, is measured and used for process control (regulation). D1 does not allude to other physical parameters for this purpose.

D2 (EP-A-0 254 803) describes a simple, economical method for producing pure, aqueous amine oxide/cellulose solutions. It is emphasised in



column 2, lines 43-52 that the concentration of the end product can be monitored (regulated) with the aid of the index of refraction or **density measuring** and the solution thus obtained can be used directly for all known applications (the production of cellulose fibres is mentioned in column 1, line 5).

D2 therefore equates the measuring of an optical property of the solution with a non-optical solution property.

Nevertheless, for the following reasons it would not have been obvious for a person skilled in the art to replace the index of refraction used in D1 to monitor the concentration of the solution with the measuring of a non-optical solution property (density), as described in D2.

The density measuring proposed in D2 is carried out on two-component solutions (water/amine oxide solution) containing peroxide impurities, that is not on a cellulose-containing spinning solution, but rather on pure, slightly coloured starting material. In contrast, in the present application the spinning solution, that is a ternary mixture (cellulose/amine oxide/water), is regulated by measuring specific physical properties. Said mixture can also be coloured to a large extent and therefore in such a case the measuring of optical properties would not produce the desired aim.

The teaching of D2 does not suggest to a person skilled in the art in an obvious manner transferring the density measuring to the aforementioned ternary mixture or the improvements associated therewith



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

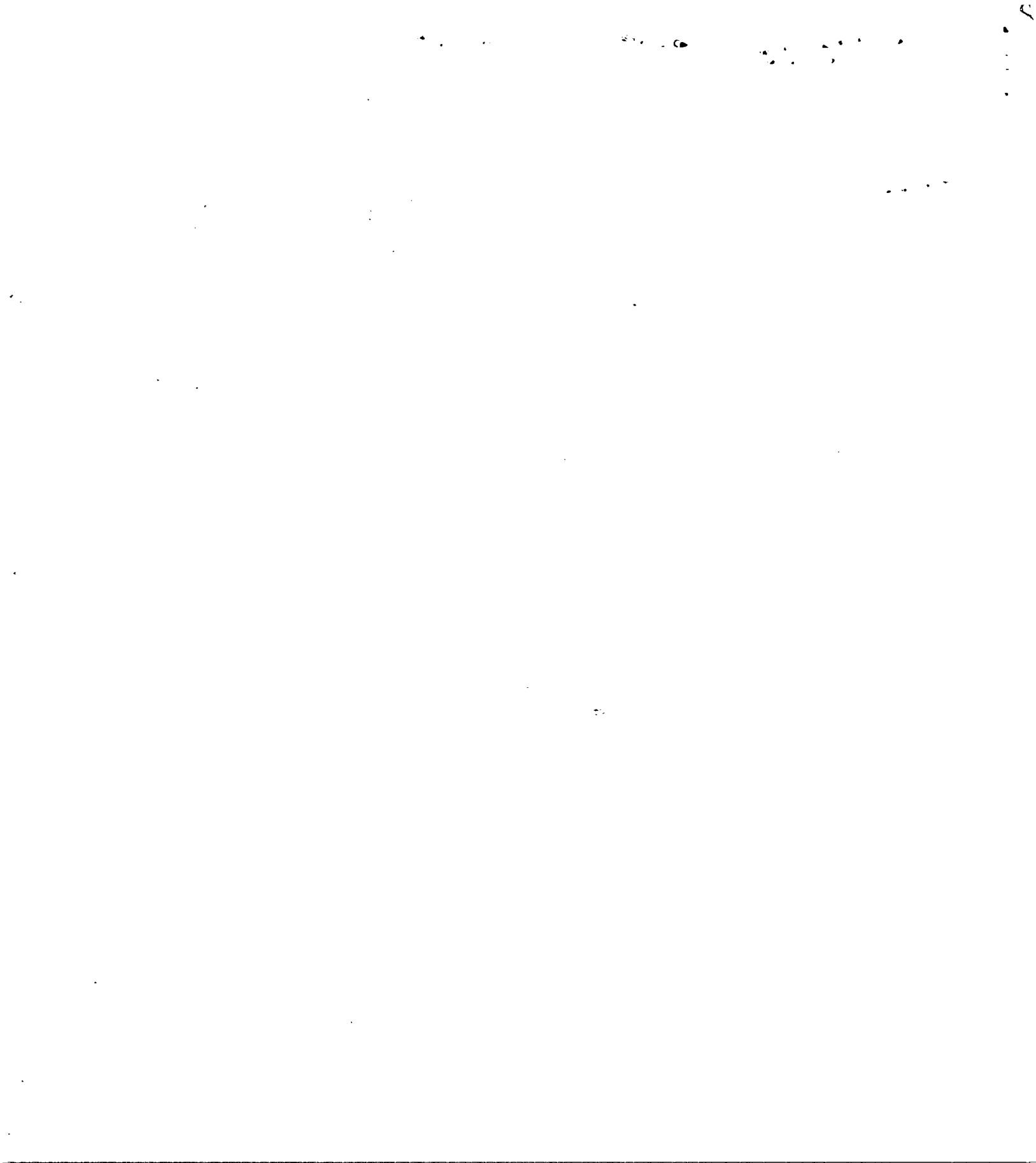
International application No.

PCT/DE 00/03409

(rapid, optimum monitoring of the spinning solution composition and the resultant improved properties of the shaped body produced).

Consequently, a combination of the above two documents would lead to the subject matter of the present application only with knowledge of the invention (*ex post facto* analysis).

Identical considerations apply to the claimed device. If the necessary modification to the measuring device known from D1 involves an inventive step, the same must apply to the corresponding apparatus.



Der Antrag ist bei der zuständigen in der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde oder, wenn zwei oder mehr Behörden zuständig sind, bei der vom Anmelder gewählten Behörde einzureichen. Der Anmelder kann den Namen oder den Zwei-Buchstaben-Code der Behörde auf der nachstehenden Zeile angeben.
IPEA/

PCT

KAPITEL II

ANTRAG AUF INTERNATIONALE VORLÄUFIGE PRÜFUNG

nach Artikel 31 des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens:
Der (die) Unterzeichnete(n) beantragt (beantragen), daß für die nachstehend bezeichnete internationale Anmeldung
die internationale vorläufige Prüfung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem
Gebiet des Patentwesens durchgeführt wird und benennt hiermit als ausgewählte Staaten
alle auswählbaren Staaten (soweit nichts anderes angegeben).

Von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde auszufüllen

Bezeichnung der IPEA	Eingangsdatum des ANTRAGS
Feld Nr. I KENNZEICHNUNG DER INTERNATIONALEN ANMELDUNG	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/03409	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 29/09/2000
(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 06/10/1999	
Bezeichnung der Erfindung Verfahren und Vorrichtung zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en)	
Feld Nr. II ANMELDER	
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staates anzugeben.) Aiceru Schwarza GmbH Breitscheidstr. 148 D-07407 Rudolstadt	Telefonnr.: Telefaxnr.: Fernschreibnr.:
Staatsangehörigkeit (Staat): Deutschland	Sitz oder Wohnsitz (Staat): Deutschland
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staates anzugeben.) Niemz, Frank-Günter, Dr. An der Brücke 19 D-07407 Rudolstadt	
Staatsangehörigkeit (Staat): Deutschland	Sitz oder Wohnsitz (Staat): Deutschland
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staates anzugeben.) Meyer, Wilhelm Unterpreilipp, Ortssstraße 1 D-07407 Rudolstadt	
Staatsangehörigkeit (Staat): Deutschland	Sitz oder Wohnsitz (Staat): Deutschland
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Anmelder sind auf einem Fortsetzungsblatt angegeben.	



Fortsetzung von Feld Nr. II ANMELDER*Wird keines der folgenden Felder benutzt, so sollte dieses Blatt dem Antrag nicht beigelegt werden.***Name und Anschrift:** (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.)

Mainzer-Althof, Tanja, Dr.
 Stadtschreiberei 10
 D-63571 Gelnhausen

Staatsangehörigkeit (Staat):
 Deutschland

Sitz oder Wohnsitz (Staat):
 Deutschland

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.)**Staatsangehörigkeit (Staat):****Sitz oder Wohnsitz (Staat):****Name und Anschrift:** (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.)**Staatsangehörigkeit (Staat):****Sitz oder Wohnsitz (Staat):****Name und Anschrift:** (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.)**Staatsangehörigkeit (Staat):****Sitz oder Wohnsitz (Staat):**

Weitere Anmelder sind auf einem zusätzlichen Fortsetzungsblatt angegeben.



**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Annehmers oder Anwalts A1c 5/PCT	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/03409	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 29/09/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 06/10/1999
Annehmer ALCERU SCHWARZA GMBH et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Annehmer gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 02 Blätter.

Darüber hinaus liegt Ihnen jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der Sprache ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nukleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht rech�chierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

wird der vom Annehmer eingereichte Wortlaut genehmigt.

wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

wird der vom Annehmer eingereichte Wortlaut genehmigt.

wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Annehmer kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

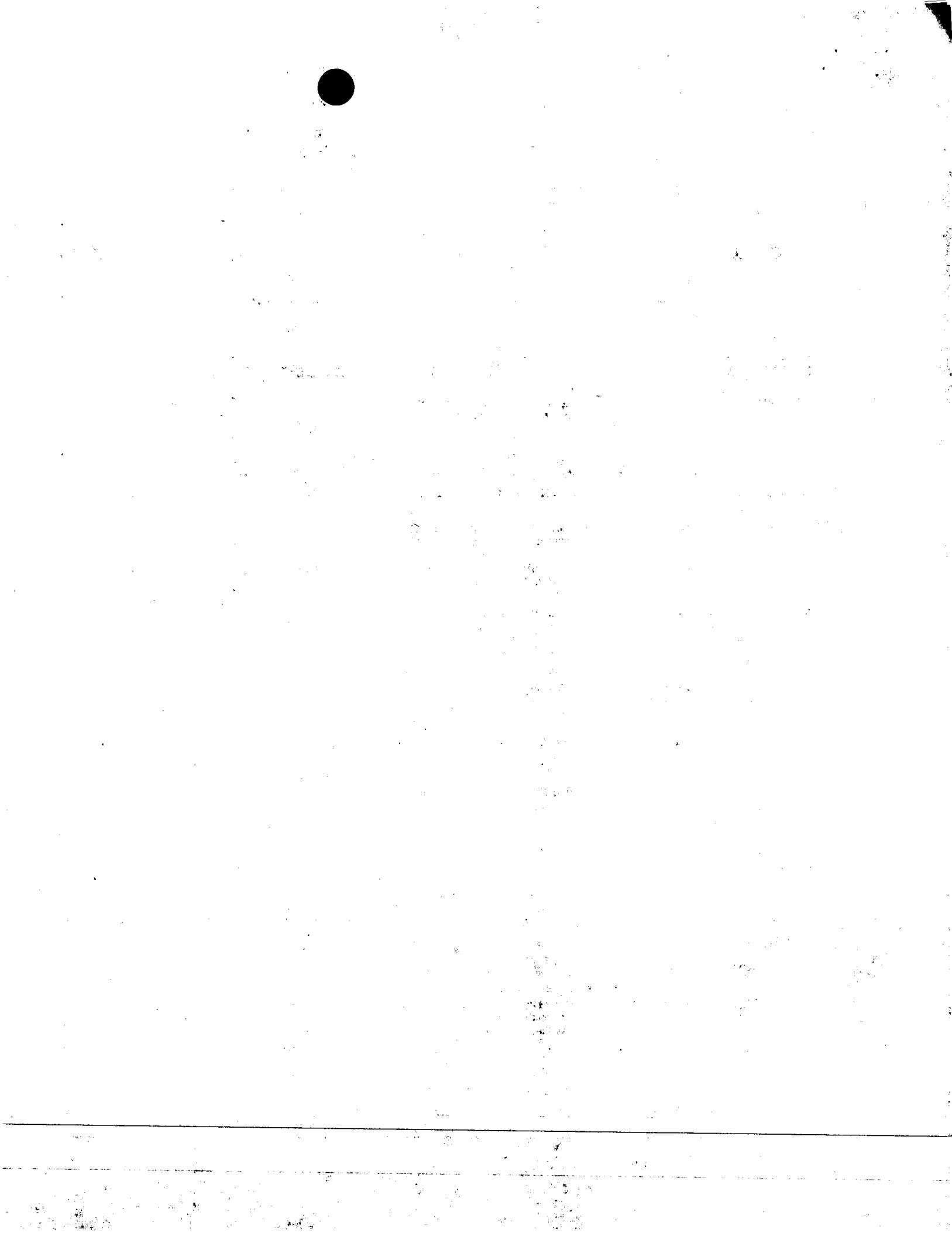
6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

wie vom Annehmer vorgeschlagen

keine der Abb.

weil der Annehmer selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.



INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/03409

A. KLASSEFIZIERUNG DES ANTRAGS	UNGSGEGENSTANDES
IPK 7 D01F2/00	C08J5/18 C08L1/02 //C08L1/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBiete

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbol)

IPK 7 D01F C08J C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGEGEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	WO 94 28212 A (COURTAULDS FIBRES HOLDINGS LTD) 8. Dezember 1994 (1994-12-08) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-8
Y	EP 0 254 803 A (HUELS CHEMISCHE WERKE AG) 3. Februar 1988 (1988-02-03) Seite 2, Spalte 2, Zeile 43 - Zeile 47; Ansprüche	1-8
Y	GB 2 217 848 A (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC) 1. November 1989 (1989-11-01) das ganze Dokument	3,8

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die gezeigt ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindorischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindorischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

& Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

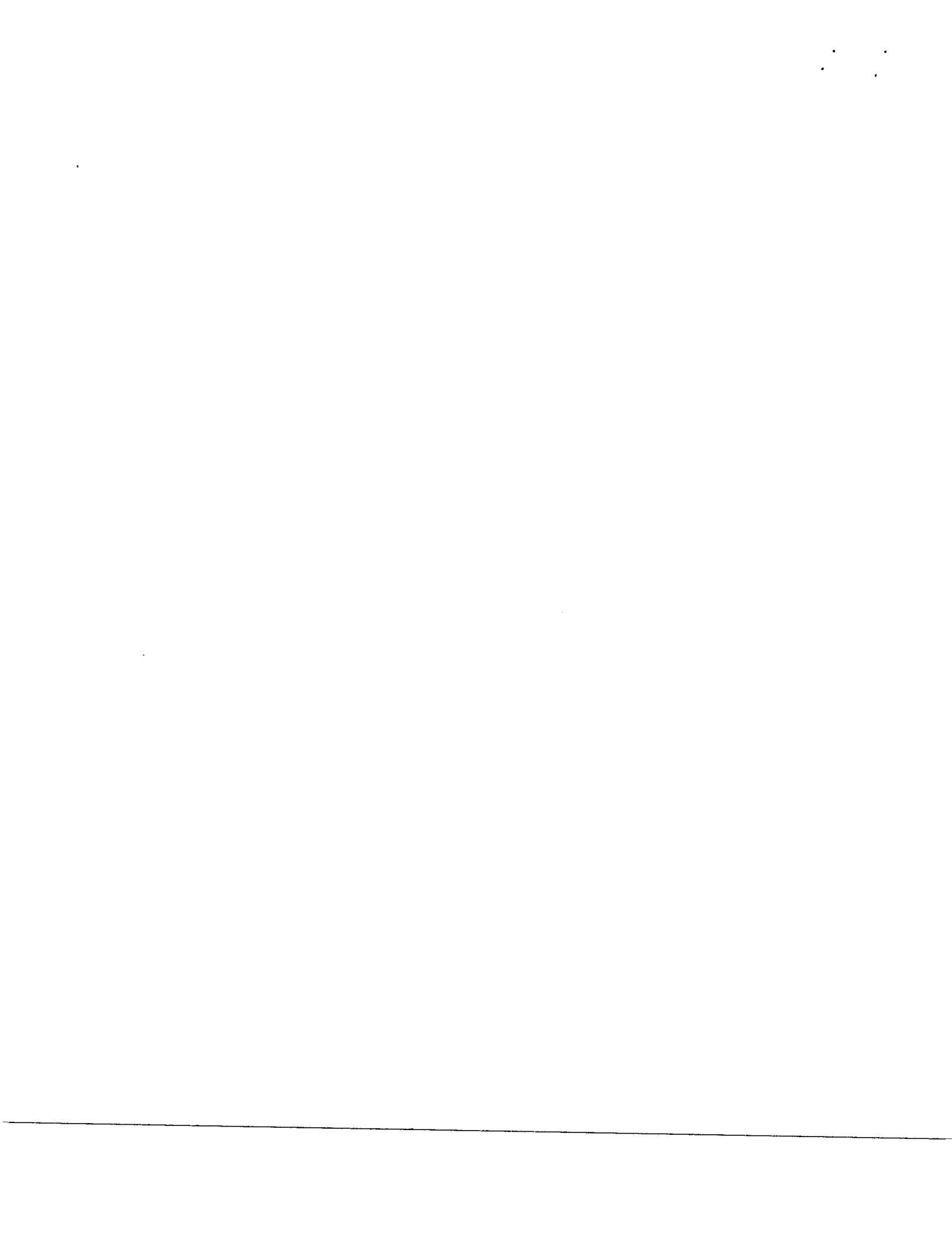
7. Februar 2001

19/02/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Tarrida Torrell, J



INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur soeben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/03409

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er), Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9428212 A	08-12-1994	US 5354524 A AT 1550 U AT 169969 T AU 678472 B AU 6727094 A BR 9406287 A CA 2163259 A CN 1124506 A CZ 9503113 A DE 69412606 D DE 69412606 T EP 0700458 A ES 2121206 T FI 955655 A HU 73033 A JP 8510511 T PL 311716 A SK 148695 A TR 28380 A US 5507983 A	11-10-1994 25-07-1997 15-09-1998 29-05-1997 20-12-1994 02-01-1996 08-12-1994 12-06-1996 13-03-1996 24-09-1998 11-02-1999 13-03-1996 16-11-1998 23-11-1995 28-06-1996 05-11-1996 04-03-1996 05-02-1997 30-05-1996 16-04-1996
EP 0254803 A	03-02-1988	DE 3618352 A CA 1279644 A FI 872367 A JP 62292775 A NO 872252 A, B, SU 1456011 A US 4748241 A	03-12-1987 29-01-1991 01-12-1987 19-12-1987 01-12-1987 30-01-1989 31-05-1988
GB 2217848 A	01-11-1989	KEINE	



**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

Absender: **MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE**

EINGEGANGEN

15. Jan. 2002

PCT PATENTANWALT
Dr. Brandenburg

An:

Brandenburg, Thomas
Frankfurter Strasse 68
D-53773 Hennef
ALLEMAGNE

**MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNGSBERICHTS**

(Regel 71.1 PCT)

Absendedatum (Tag/Monat/Jahr)	14.01.2002
----------------------------------	------------

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Alc 5/PCT	WICHTIGE MITTEILUNG
--	----------------------------

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03409	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 29/09/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 06/10/1999
--	---	--

Anmelder ALCERU SCHWARZA GMBH et al.

- Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der Internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
- Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
- Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.

4. ERINNERUNG

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der Internationalen Prüfung beauftragten Behörde	Bevollmächtigter Bediensteter
--	-------------------------------

Europäisches Patentamt
D-80298 München
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d
Fax: +49 89 2399 - 4465

Le Bolloch, C

Tel. +49 89 2399-8091





**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

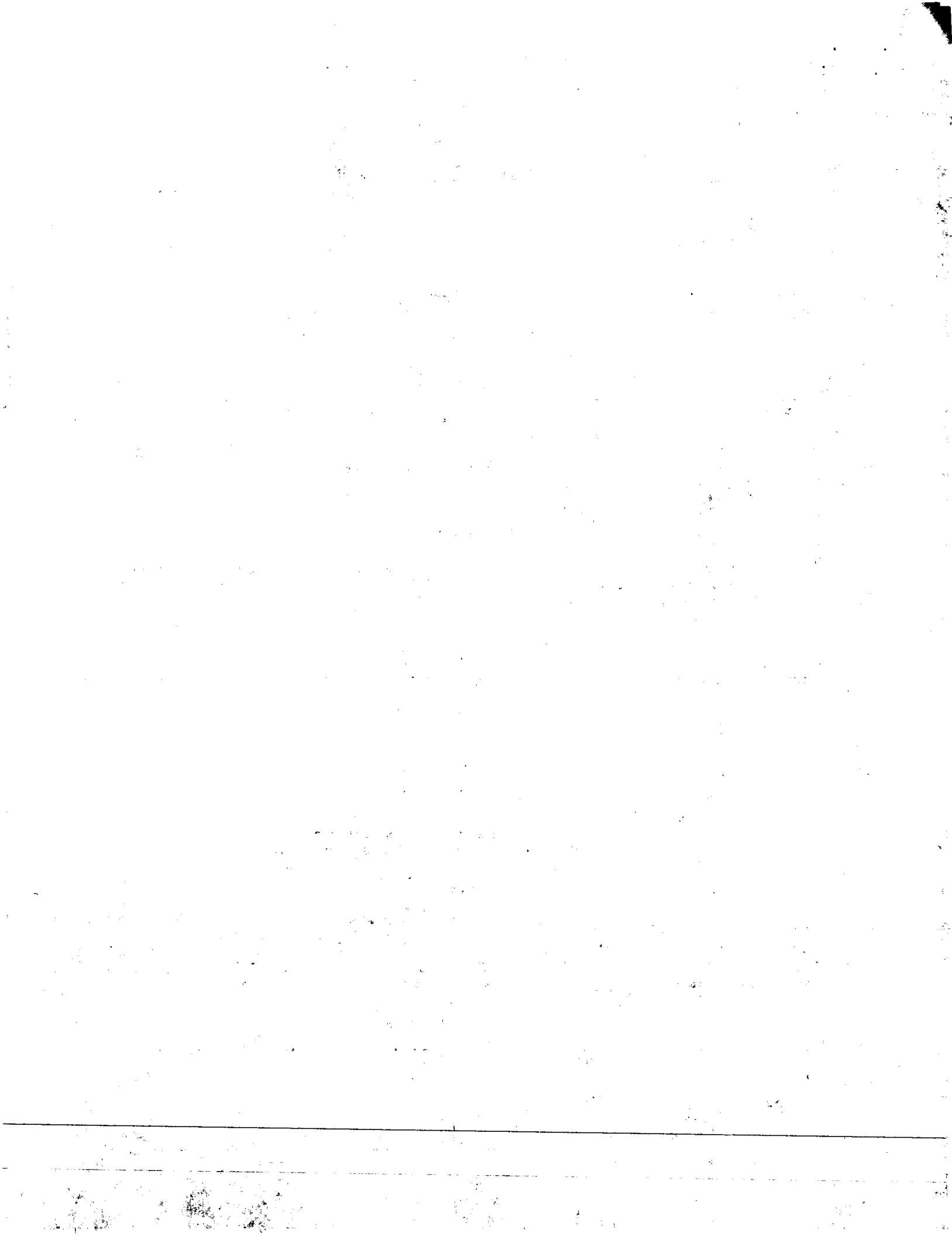
INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Alc 5/PCT	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)
Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03409	Internationales Anmelde datum (Tag/Monat/Jahr) 29/09/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 06/10/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK D01F2/00		
Anmelder ALCERU SCHWARZA GMBH et al.		
<p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfasst insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt 5 Blätter.</p>		
<p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <ul style="list-style-type: none"> I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Berichts II <input type="checkbox"/> Priorität III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen VII <input type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung VIII <input type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung 		

Datum der Einreichung des Antrags 14/04/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 14.01.2002
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Lux, R Tel. Nr. +49 89 2399 8593





**INTERNATIONALES VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03409

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*): Beschreibung, Seiten:

1,3-7 ursprüngliche Fassung

2,2a eingegangen am 27/09/2001 mit Schreiben vom 25/09/2001

Patentansprüche, Nr.:

1-7 eingegangen am 27/09/2001 mit Schreiben vom 25/09/2001

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der Sprache: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.



**INTERNATIONALE
PRÜFUNGSBERICHT**

RLÄUFIGER

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03409

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- Beschreibung, Seiten:
 Ansprüche, Nr.:
 Zeichnungen, Blatt:

- 5. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).**

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche 1-7 Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche 1-7 Nein: Ansprüche
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche 1-7 Nein: Ansprüche

**2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt**



Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Die Gesamtheit der Verfahrens- und Vorrichtungsmerkmale der unabhängigen Ansprüche 1 und 6, insbesondere die im charakterisierenden Teil besagter Ansprüche definierten Regelgrößen, sind im zitierten Stand der Technik weder vorbeschrieben noch angedeutet.

Das Neuheitskriterium (Art. 33 (2) PCT) ist somit erfüllt.

Der Anmeldungsgegenstand (Verfahren und Vorrichtung) beruht aus folgenden Gründen auch auf einer erfinderischen Tätigkeit (Art. 33 (3) PCT):

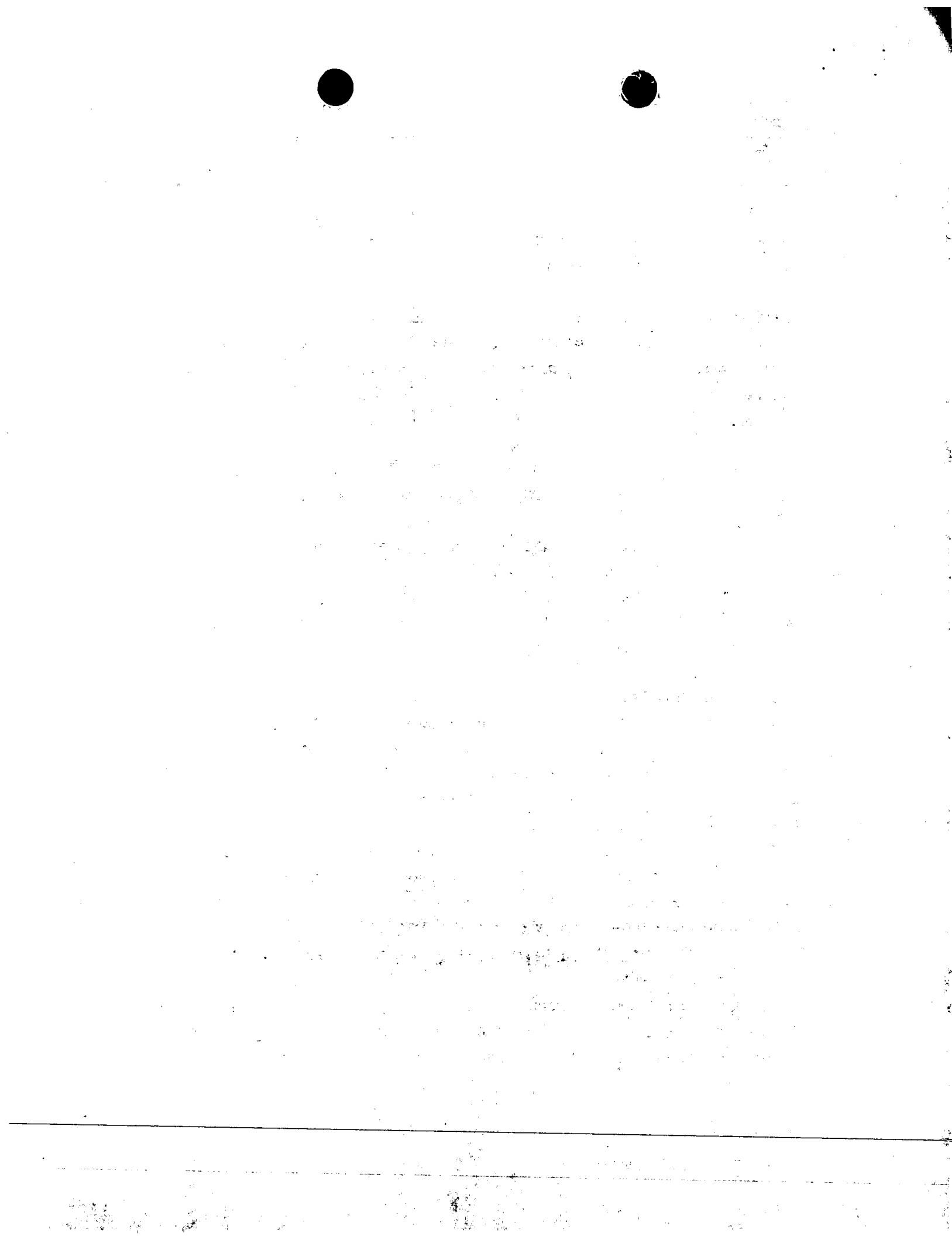
Ein Verfahren und eine Vorrichtung gemäß der Oberbegriffe der vorliegenden Ansprüche 1 und 6 ist aus D1 (WO 94/28212) bekannt. Im Gegensatz zur Erfindung wird in D1 jedoch eine optische Eigenschaft, nämlich der Brechungsindex, gemessen und zur Prozeßsteuerung (Regelung) eingesetzt. Andere physikalische Parameter werden für diesen Zweck in D1 nicht angedeutet.

In D2 (EP-A-0 254 803) ist nun ein einfaches, wirtschaftliches Verfahren zur Herstellung von reinen, wässrigen Aminoxid/Cellulose-Lösungen beschrieben. In Spalte 2, Zeilen 43-52 wird hervorgehoben, daß die Konzentration des Endproduktes mit Hilfe des Brechungsindeks oder einer **Dichtemessung** überwacht (geregelt) werden kann und die damit erhaltene Lösung für alle bekannten Anwendungsfälle (die Cellulosefaserherstellung wird in Spalte 1, Zeile 5 genannt) direkt einsetzbar ist.

Es wird an dieser Stelle also die Gleichwertigkeit der Messung einer optischen Eigenschaft der Lösung und einer nicht-optischen Lösungseigenschaft offenbart.

Aus folgenden Gründen war es für den Fachmann dennoch nicht naheliegend den in D1 zur Überwachung der Lösungskonzentration verwendeten Brechungsindex durch die Messung einer nicht-optischen Lösungseigenschaft (Dichte), wie in D2 beschrieben, zu ersetzen.

Die in D2 vorgeschlagene Dichtemessung wird an einer Zweikomponentenlösungen (Wasser/Aminoxid-Lösung), die Peroxidverunreinigungen enthält, ausgeführt, also nicht an einer cellulosehaltigen Spinnlösung, sondern am reinen, nur leicht gefärbten

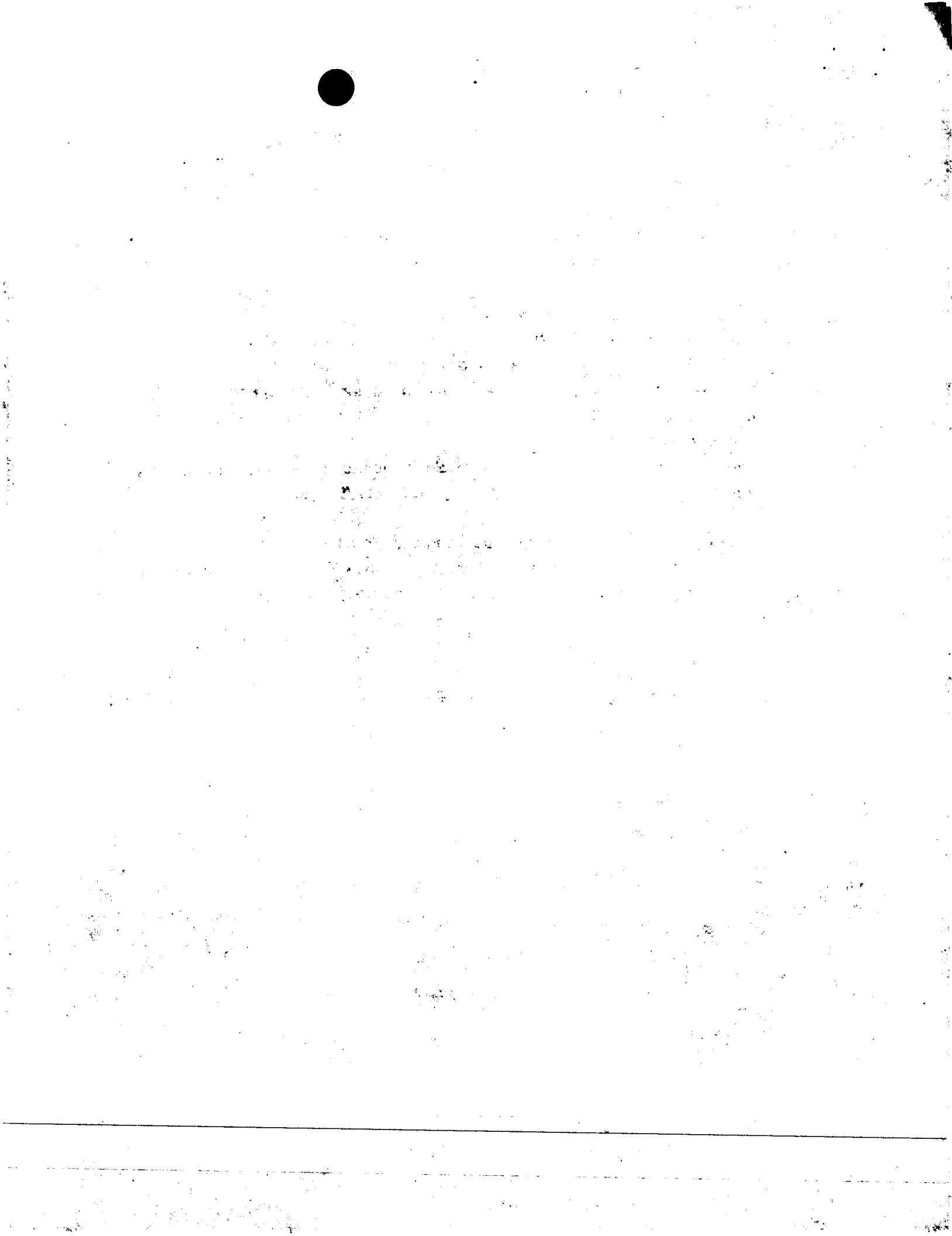


Ausgangsmaterial. Im Gegensatz hierzu wird in der vorliegenden Anmeldung die Spinnlösung, also ein ternäres Gemisch (Cellulose/Aminoxid/Wasser), über die Messung bestimmter phys. Eigenschaften geregelt. Dieses Gemisch kann auch stark gefärbt sein, sodaß in diesem Fall die Messung optischer Eigenschaften nicht zum Ziel führen würde.

Der Fachmann wird durch die Lehre von D2 nicht in naheliegenderweise auf die Übertragung der Dichtemessung auf besagtes ternäres Gemisch und die damit verbundenen Verbesserungen (schnelle, optimale Überwachung der Spinnlösungs zusammensetzung und daraus resultierende verbesserte Eigenschaften der hergestellten Formkörper) hingeführt.

Folglich käme er durch Kombination beider Dokumente nur in Kenntnis der Erfindung zum vorliegenden Anmeldungsgegenstand (ex post facto Analyse).

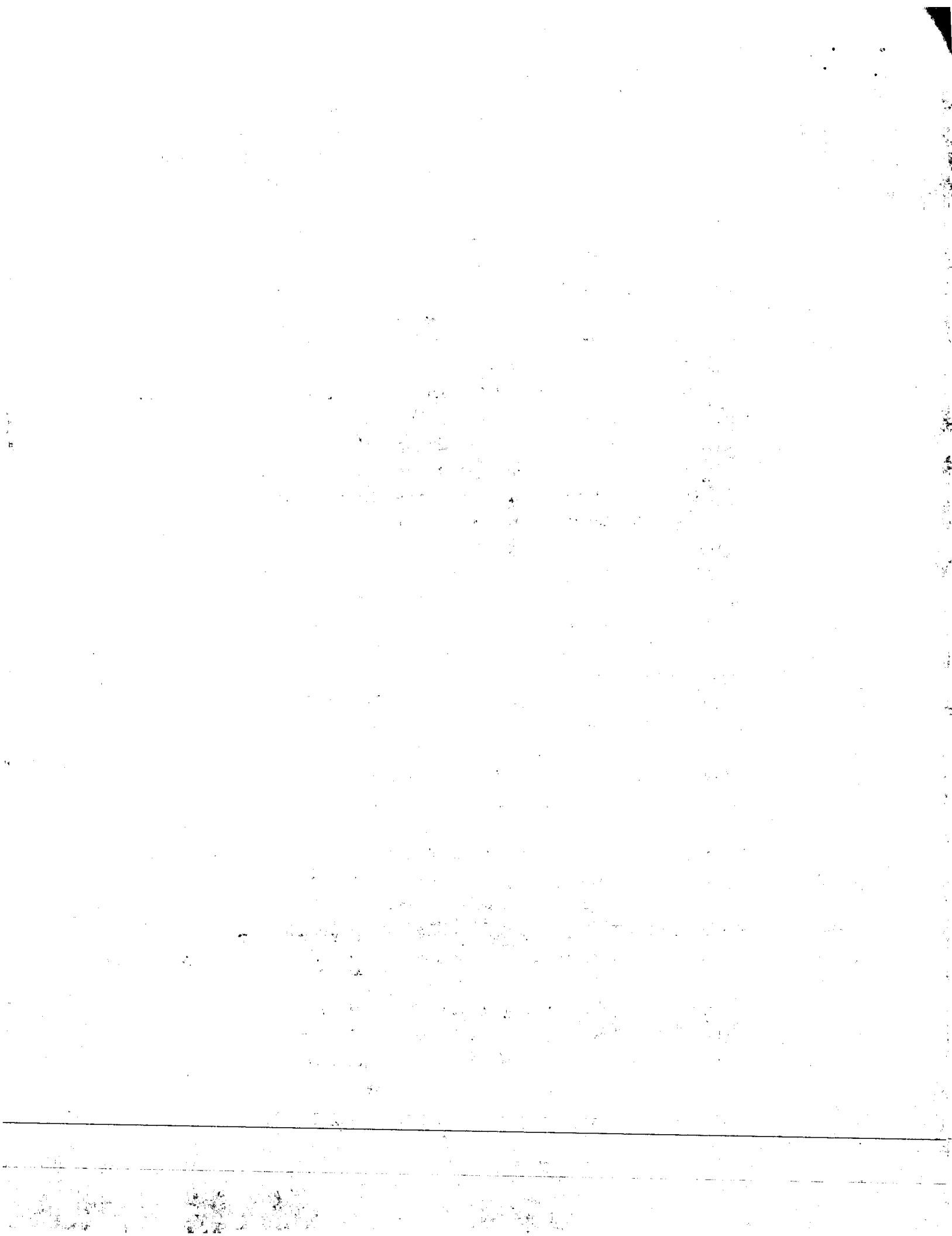
Identische Überlegungen gelten für die beanspruchte Vorrichtung. Wenn die nötige Modifizierung der aus D1 bekannten Meßeinrichtung eine erforderliche Tätigkeit erfordert, dann gilt dies zwangsläufig auch für die entsprechende Apparatur.



Die Eigenschaften der nach dem Aminoxidverfahren hergestellten cellulosischen Formkörper, insbesondere die textilphysikalischen Eigenschaften der erzeugten Fasern und Filamente hängen in hohem Maße von der Zusammensetzung der Extrusionslösung ab. Zur Einhaltung optimaler Eigenschaften ist es daher erwünscht, die Zusammensetzung der Lösung zu überwachen und Schwankungen in engen Grenzen zu halten. Bei einem kontinuierlichen Verfahren wie dem vorliegenden Aminoxidverfahren ist die Prozessüberwachung für eine wirtschaftliche Fahrweise von Bedeutung. Es ist daher wichtig, auch die Konzentrationen der wässrigen Aminoxidlösungen in den Stufen (c), (d) und (e) zu messen und die Lösungszusammensetzungen zu regeln.

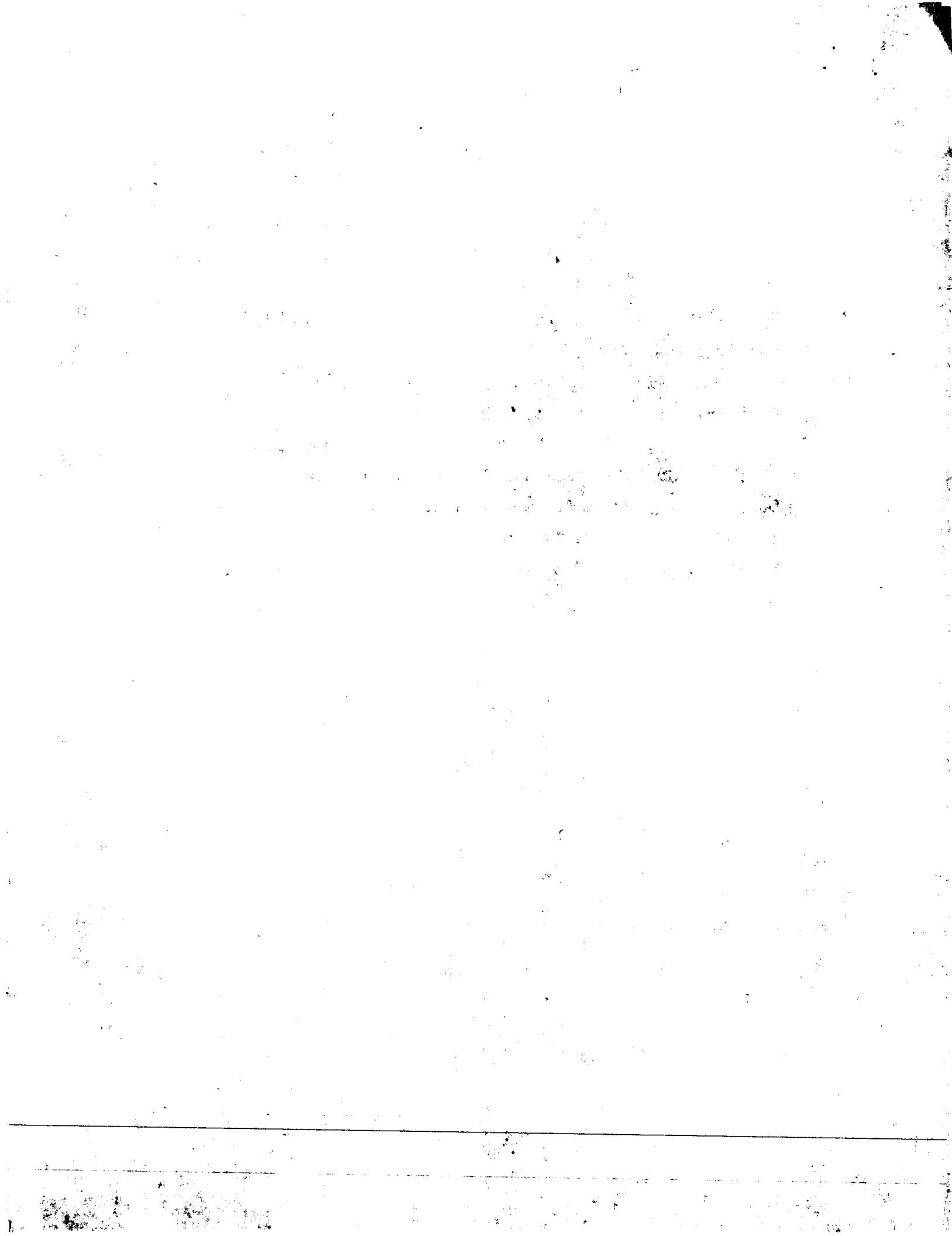
Aus WO 94/28212 ist es bekannt, von Zeit zu Zeit eine Probe der dem Extrusionsapparat zufließenden Spinnlösung zu entnehmen und ihren Brechungsindex zu messen. Dieser soll bei 60°C in dem Bereich von 1,489 bis 1,491 liegen, damit Extrusionsprodukte mit zufriedenstellenden Eigenschaften erhalten werden. Es ist ferner bekannt, den Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösungen innerhalb bestimmter Grenzen zu halten. So soll der Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösung für das Fällbad bei 60°C zwischen 1,3644 und 1,3708 liegen, während für die konzentrierte Aminoxidlösung für die Bildung der Zellstoffsuspension der Brechungsindex in dem Bereich von 1,4620 bis 1,4628 liegen kann, ohne daß Dosierorgane betätigt oder die Verdampferbedingungen verändert werden müssen. Die Überwachung des Brechungsindex der Lösung in einem mehr oder weniger breiten Bereich erlaubt keine exakte Regelung der Zusammensetzung der Lösung. Außerdem versagt dieses Verfahren bei Lösungen mit starker Lichtabsorption und/oder -streuung.

Der vorliegenden Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von cellulosischen Formkörpern nach dem Aminoxidverfahren zu schaffen, bei dem die Zusammensetzung der Spinnlösung genau überwacht werden kann. Die Regelung der Zusammensetzung soll genauer erfolgen als dies aufgrund eines Brechungs-



2 a

Die EP 0 254 803 offenbart ein Verfahren zur Herstellung einer wässrigen, reinen N-Methylmorpholin-N-Oxid-Lösung durch Umsetzung von Methylmorpholin mit einem wässrigen Wasserstoffperoxid, wobei man Mischungen von Methylmorpholin mit Wasser destilliert, das Methylmorpholin-Wasser-Azeotrop bei Temperaturen von 60° bis 100 °C mit einer wässrigen Wasserstoffperoxidlösung umsetzt und die Reaktionslösung anschließend auf den gewünschten Gehalt N-Methylmorpholin-N-Oxid auf konzentriert. Die Konzentration des so erhaltenen Entproduktes kann mit Hilfe des Brechungsexponenten oder einer Dichtenmessung überwacht werden, wobei das Endprodukt nur leicht gelblich gefärbt ist und als Verunreinigungen kaum noch nachzuweisende Mengen an Peroxid, Methylmorpholin und Carboxylgruppen enthalten kann.



Neue Ansprüche

- 1.** Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung (en) bei der Herstellung von cellulosischen Formkörpern, bei dem man
 - (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt,
 - (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet,
 - (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Fällbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert,
 - (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewachsen wird, und
 - (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und / oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eigenschaft der Lösungen gemessen und aufgrund des messwertes die Zusammensetzung der Lösungen geregelt wird, dadurch gekennzeichnet, daß man wenigstens eine Eigenschaft der genannten Lösungen misst und die Abweichung (en) des Messwertes bzw. der Messwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung (en) dieser Lösung (en) benutzt, wobei die Eigenschaft der Lösung unter der Dielektrizitätskonstanten, der induktiven Leitfähigkeit, der Mikrowellenabsorption, der Dichte, dem Wassergehalt und der Ultraschallgeschwindigkeit auswählt.
- 2.** Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man die Temperatur der Lösung bei oder kurz vor oder nach der



Messung der Eigenschaft mißt und den Meßwert der Eigenschaft aufgrund der Meßtemperatur kompensiert.

3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß man die Eigenschaft in-line mißt.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Dosierung der Komponenten in Stufe (a), (c) oder (d) eingreift.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Betriebsbedingungen der Stufe (b) und/oder (e) eingreift.

6. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 5, mit

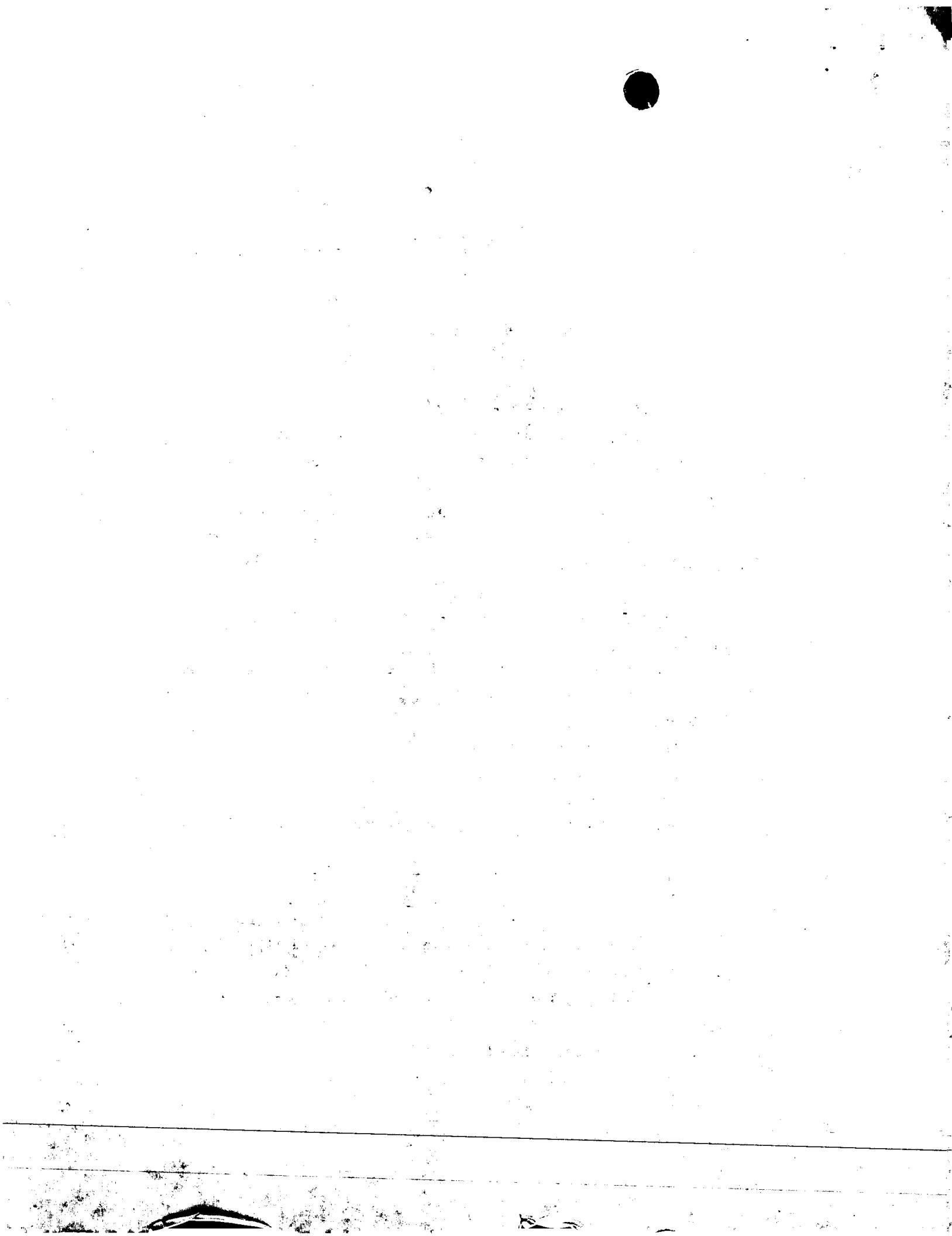
einem mit Dosierorganen ($1^a, 1^b$) bestückten Anmaischeapparat (2), einer an den Anmaischeapparat (2) angeschlossenen Löse- und Eindampfeinrichtung (3),

einer an die Löse- und Eindampfeinrichtung (3) über eine Leitung (8) angeschlossenen Extrusionseinrichtung (4) mit einem nachgeschalteten Fällbad (5),

wenigstens einem Waschbad, das eine verdünnte wässrige Aminoxidlösung enthält, und

Einrichtungen zur Messung einer Eigenschaft der Lösung(en) zwecks Überwachung ihrer Zusammensetzung,

dadurch gekennzeichnet, daß in der Leitung (8,19,24) oder einem Behälter, die bzw. der die zu überwachende Lösung enthält, ein Gerät (9,21,11) zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösung angeordnet ist, und daß das Meßgerät zusammen mit vorgeschalteten Dosierorganen ($1^a, 1^b$; 17) oder Eindampfeinrichtungen (3;20) Regelkreise (13,14,15; 18; 23) für die Regelung der Lösungszusammensetzung bildet.



7. Vorrichtung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß das Meßgerät (9, 11, 21) ein Gerät zur Messung der Lösungstemperatur und eine Temperaturkompensation des Meßwerts des Geräts umfaßt.



(12) NACH D^{ER} P^{ATENT}VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
P^{ATENT}WESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
12. April 2001 (12.04.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/25512 A2

(51) Internationale Patentklassifikation⁷:

D01D

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): ALCERU SCHWARZA GMBH (DE/DE); Breitscheidstr. 148, 07407 Rudolstadt (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE00/03409

(72) Erfinder; und

(22) Internationales Anmeldedatum:

29. September 2000 (29.09.2000)

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): NIEMZ, Frank-Günther (DE/DE); An der Brücke 19, 07407 Rudolstadt (DE). MEYER, Wilhelm (DE/DE); Unerpreilipp, Ortsstrasse 1, 07407 Rudolstadt (DE). MAINZER-ALTHOF, Tanja (DE/DE); Stadtschreiberei 10, 63571 Gelhausen (DE).

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(74) Anwalt: BRANDENBURG, Thomas; Frankfurter Str. 68, 53773 Hennef (DE).

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DK,

(30) Angaben zur Priorität:

199 47 908.9

6. Oktober 1999 (06.10.1999) DE

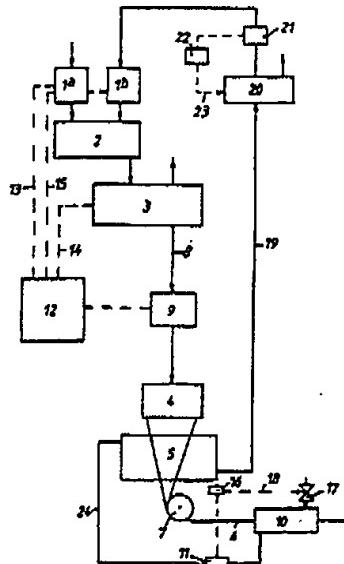
199 49 727.3

15. Oktober 1999 (15.10.1999) DE

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR REGULATING THE COMPOSITION OF SOLUTION(S)

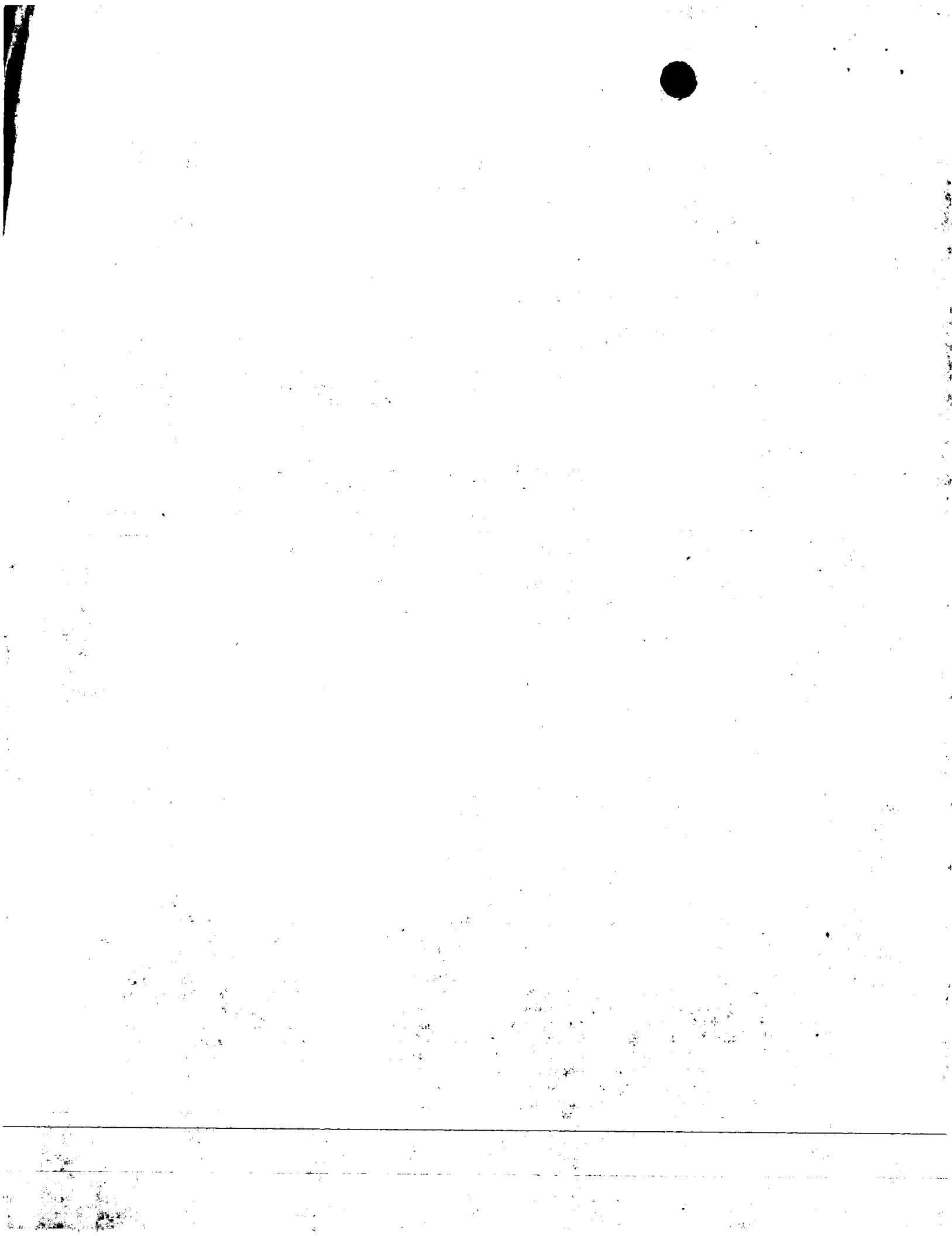
(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR REGELUNG DER ZUSAMMENSETZUNG VON LÖSUNG(EN)



(57) Abstract: A method for regulating the composition of a solution(s) in the production of cellulosic mouldings comprises (a) mixing cellulose and a water containing amine oxide to form a suspension, (b) forming a cellulose solution from the suspension by evaporating water, (c) extruding the cellulose solution through an air gap in a precipitation bath containing an aqueous amine oxide solution, where it coagulates into the moulded shape, (d) passing the moulding through an aqueous wash solution, in which the residual amine oxide is washed out of the moulding and (e) recycling the aqueous amine oxide solutions from stages (c) and/or (d) to stage (a) after concentration. A property of the solutions is measured and on the basis of the measured value the composition of the solutions is controlled, whereby a non-optical property or a physical behaviour of at least one of the said solutions is measured and the deviation(s) of the measured value(s) from a preset value used for control of the composition(s) of the said solution(s). The inventive method allows a precise monitoring of the composition of the extruded solution.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 01/25512 A2





DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL,
IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU,
LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT,
RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu
veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

- (84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), cura-
casisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI,
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent

(57) Zusammenfassung: Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en) bei der Herstellung von cellulosischen Formkörpern, bei dem man (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt, (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet, (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Füllbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert, (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewaschen wird, und (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und/oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eigenschaft der Lösungen gemessen und aufgrund des Messwertes die Zusammensetzung der Lösungen geregelt wird, dadurch gekennzeichnet, dass man eine nicht-optische Eigenschaft oder ein physikalisches Verhalten wenigstens einer der genannten Lösungen misst und die Abweichung(en) des Messwertes bzw. der Messwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung(en) dieser Lösung(en) benutzt. das Verfahren erlaubt eine genaue Überwachung der Zusammensetzung der Extrusionslösung.



**Verfahren und Vorrichtung zur Regelung
der Zusammensetzung von Lösung(en)**

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en) bei der Herstellung von cellulosischen Formkörpern, bei dem man (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt, (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet, (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Fällbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert, (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewaschen wird, und (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und/oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eigenschaft bzw. ein physikalisches Verhalten der Lösungen gemessen und aufgrund der Meßwerte die Zusammensetzung der Lösungen geregelt werden.

Die Erfindung betrifft auch eine Vorrichtung zur Durchführung dieses Verfahrens mit einem mit Dosierorganen bestückten Anmaischeapparat, einer an den Anmaischeapparat angeschlossenen Löse- und Eindampfungseinrichtung, einer an die Löse- und Eindampfungseinrichtung über eine Leitung angeschlossenen Extrusionseinrichtung mit einem nachgeschalteten Fällbad, wenigstens einem Waschbad, das eine stark verdünnte, wässrige Aminoxidlösung enthält, sowie Einrichtungen zur Messung einer Eigenschaft der Lösung(en) zwecks Überwachung ihrer Zusammensetzung. Unter die Eigenschaft der Celluloselösung soll im Rahmen der vorliegenden Erfindung auch ein messbares physikalisches Verhalten der Lösung fallen.



- 2 -

Die Eigenschaften der nach dem Aminoxidverfahren hergestellten cellullosischen Formkörper, insbesondere die textilphysikalischen Eigenschaften der ersponnenen Fasern und Filamente hängen in hohem Maße von der Zusammensetzung der Extrusionslösung ab. Zur Einhaltung optimaler Eigenschaften ist es daher erwünscht, die Zusammensetzung der Lösung zu überwachen und Schwankungen in engen Grenzen zu halten. Bei einem kontinuierlichen Verfahren wie dem vorliegenden Aminoxidverfahren ist die Prozessüberwachung für eine wirtschaftliche Fahrweise von Bedeutung. Es ist daher wichtig, auch die Konzentrationen der wässrigen Aminoxidlösungen in den Stufen (c), (d) und (e) zu messen und die Lösungszusammensetzungen zu regeln.

Aus WO 94/28212 ist es bekannt, von Zeit zu Zeit eine Probe der dem Extrusionsapparat zufließenden Spinnlösung zu entnehmen und ihren Brechungsindex zu messen. Dieser soll bei 60°C in dem Bereich von 1,489 bis 1,491 liegen, damit Extrusionsprodukte mit zufriedenstellenden Eigenschaften erhalten werden. Es ist ferner bekannt, den Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösungen innerhalb bestimmter Grenzen zu halten. So soll der Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösung für das Fällbad bei 60°C zwischen 1,3644 und 1,3708 liegen, während für die konzentrierte Aminoxidlösung für die Bildung der ZellstoffSuspension der Brechungsindex in dem Bereich von 1,4620 bis 1,4628 liegen kann, ohne daß Dosierorgane betätigt oder die Verdampferbedingungen verändert werden müssen. Die Überwachung des Brechungsindex der Lösung in einem mehr oder weniger breiten Bereich erlaubt keine exakte Regelung der Zusammensetzung der Lösung. Außerdem versagt dieses Verfahren bei Lösungen mit starker Lichtabsorption und/oder -streuung.

Der vorliegenden Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von cellullosischen Formkörpern nach dem Aminoxidverfahren zu schaffen, bei dem die Zusammensetzung der Spinnlösung genau überwacht werden kann. Die Regelung der Zusammensetzung soll genauer erfolgen als dies aufgrund eines Brechungs-



- 3 -

indexbereiches möglich ist. Darüber hinaus soll ein Verfahren zur Herstellung von cellulosischen Formkörpern nach dem Aminoxidverfahren geschaffen werden, bei dem die Zusammensetzung der Lösung mit möglichst geringer Verzögerung geregelt wird, damit auftretende Schwankungen in der Zusammensetzung in engen Grenzen gehalten werden können. Insbesondere soll auch ein Verfahren zur Herstellung cellulosischer Formkörper nach dem Aminoxidverfahren geschaffen werden, bei dem die Zusammensetzungen der verschiedenen im Verfahrensverlauf auftretenden Lösungen auch dann geregelt werden können, wenn die Brechungsindexmessung unbrauchbar ist, weil die Lösungen das Licht zu stark absorbieren oder streuen. Schließlich soll auch eine Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens geschaffen werden, durch die Änderungen der Zusammensetzung von Lösungen des Aminoxidverfahrens, und zwar sowohl Spinnlösungen als auch cellulosefreien, wässrigen Aminoxidlösungen in engen Grenzen gehalten oder eliminiert werden können. Weitere Vorteile der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung.

Diese Aufgabe wird bei dem eingangs genannten Verfahren erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß man eine nicht-optische Eigenschaft wenigstens einer der genannten Lösungen mißt und die Abweichung(en) des Meßwerts bzw. der Meßwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung(en) dieser Lösung(en) benutzt. Anders als das oben genannte Verfahren mit Messung des Brechungsindexes wird erfindungsgemäß ein enger Toleranzbereich der Meßgröße vorgegeben. Abweichungen des Meßwertes von einem bestimmten Sollwert lösen unmittelbar einen Eingriff an den Stellgliedern des Regelkreises aus. Es wird daher eine striktere Regelung der Lösungszusammensetzung erreicht als sie möglich ist, wenn die Regelung erst aktiviert wird, wenn der Meßwert einen vorgegebenen Toleranzbereich verläßt. Die Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösungen setzt zudem nicht die Durchsichtigkeit der Lösungen für das Licht der benutzten Wellenlänge voraus.



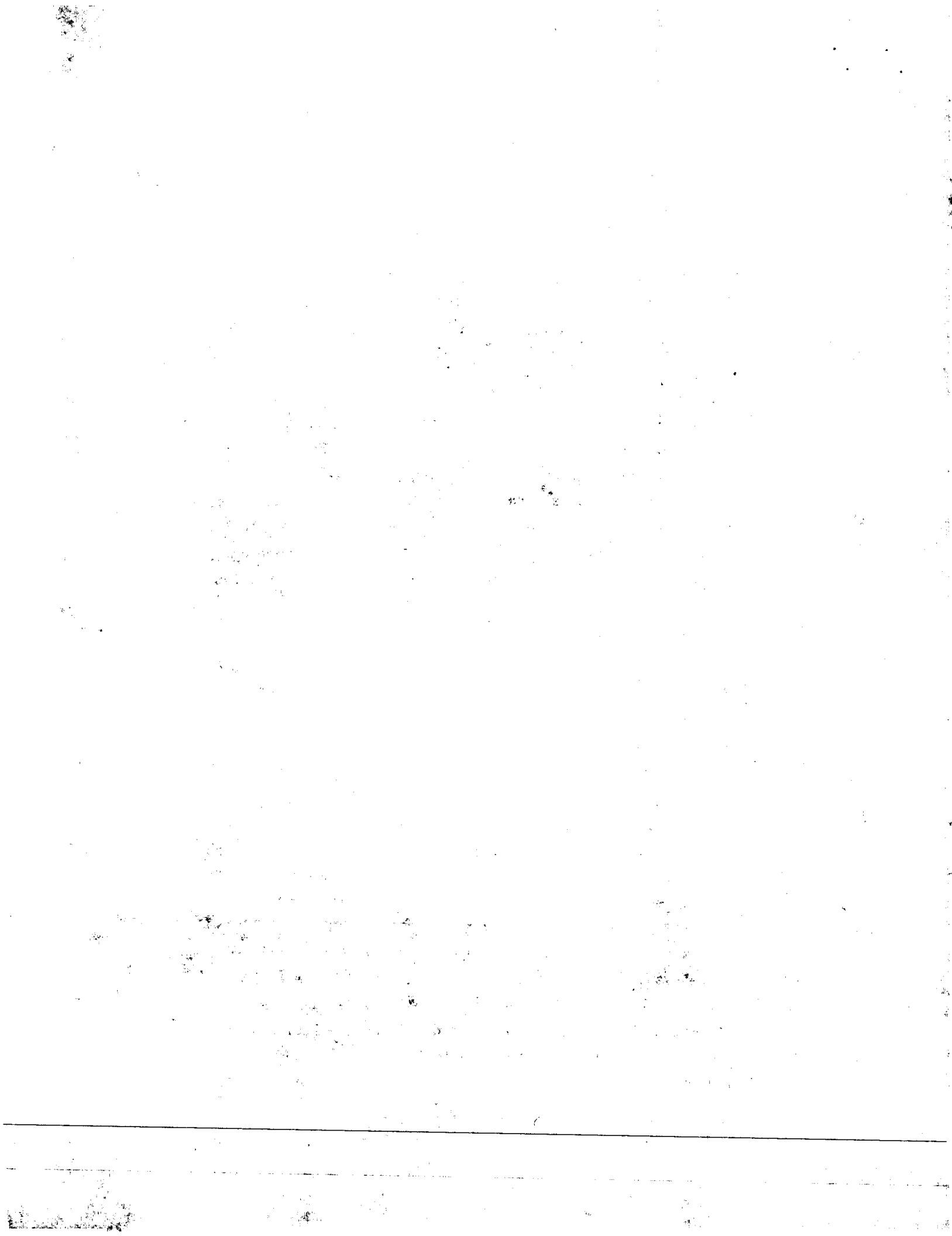
- 4 -

Daher können auch Spinnlösungen, die definierte Anteile an Zusatzstoffen, wie z.B. Titandioxid, Farb- oder Füllstoffe enthalten, und im Prozess anfallende Aminoxidlösungen, die durch Verunreinigungen stark gefärbt sind, überwacht und in Bezug auf ihre Konzentration geregelt werden.

Nach der bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wählt man als die zu messende nicht-optische Eigenschaft der Lösung die Dielektrizitätskonstante, die (elektrische) Leitfähigkeit, die Mikrowellenintensität und -geschwindigkeit, die Dichte, den Wassergehalt oder die Ultraschallgeschwindigkeit. Durchsichtige und un durchsichtige Lösungen im Prozess können mittels Messungen der gleichen Eigenschaft überwacht werden, wodurch der Meß- und Regelaufwand minimiert werden kann. Der Wassergehalt kann nach Karl-Fischer bestimmt werden.

Nach der bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens mißt man die Temperatur der Lösung bei oder kurz vor oder nach der Messung einer der genannten Lösungseigenschaften und kompensiert man den Meßwert aufgrund der gemessenen Temperatur. Da die Temperatur der Lösung variieren kann, müssen die Meßwerte auf eine Bezugstemperatur umgerechnet werden, bei der der Meßwert der betreffenden Eigenschaft der Lösung von Soll-Zusammensetzung bekannt ist, mit dem der aktuelle Meßwert zu vergleichen ist. Die Bezugstemperatur, auf die die Meßwerte umgerechnet werden, ist beispielsweise 50°C oder 60°C.

Vorzugsweise mißt man die Eigenschaft der Lösung in-line. Die in-line-Messungen erlauben nicht nur eine schnelle Ermittlung der Lösungszusammensetzung bei geringem Strömungswiderstand, sondern sie vermeiden bei Spinnlösungen auch das durch die Zersetzung der Lösung bestehende Sicherheitsrisiko, das beispielsweise in Toträumen der Leitung (z.B. Probenahmestutzen) durch das mögliche Einsetzen von run-away-Reaktionen besteht.

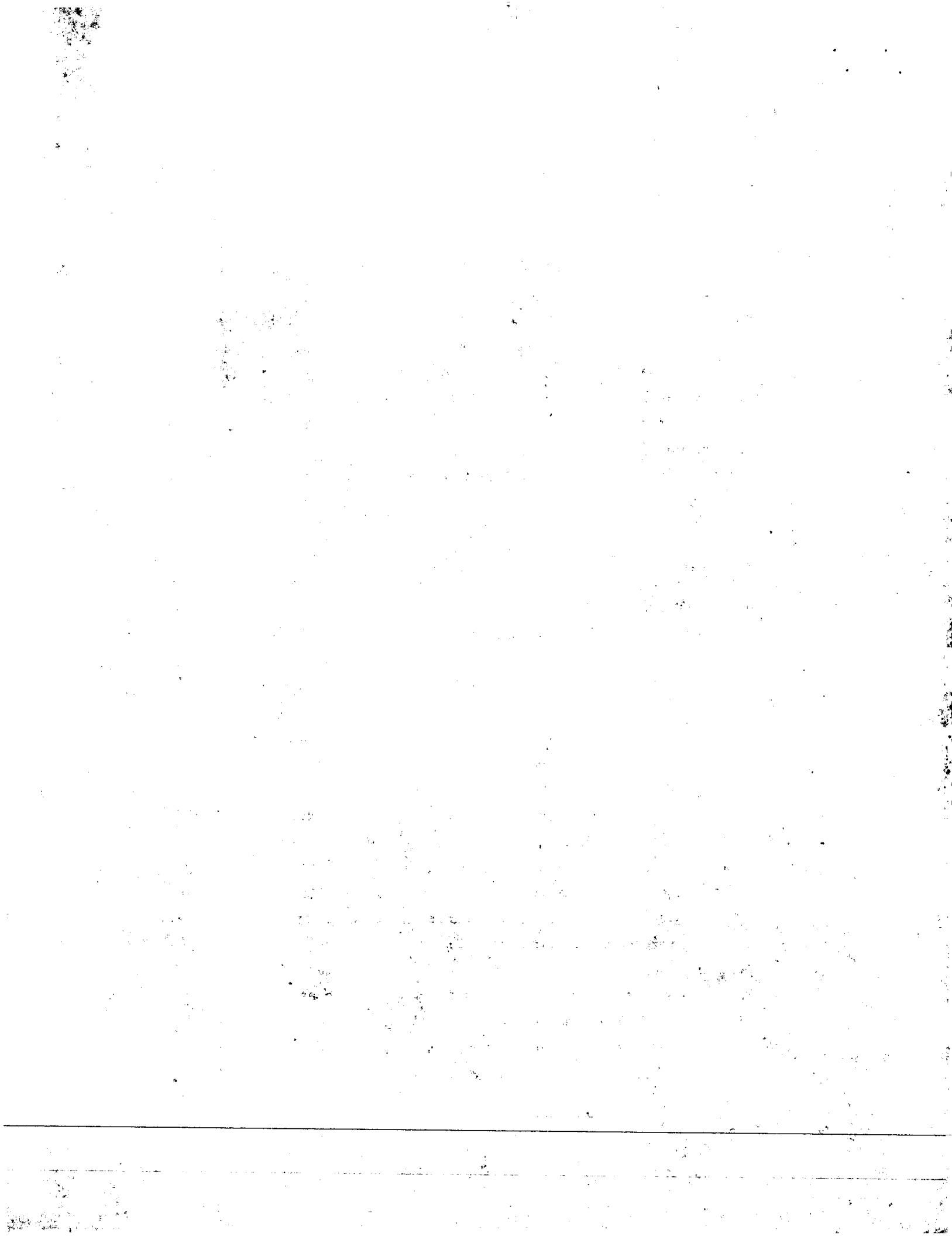


- 5 -

Bei einer Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens greift man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Dosierung der Komponenten in Stufe (a), (b) bzw. (d) ein. Wird z.B. eine Änderung der Zusammensetzung der Spinnlösung aufgrund der Eigenschaftsmessung festgestellt, ist ein Eingriff in die Dosierung der Komponenten Zellstoff und/oder Lösungsmittel NMNO/H₂O notwendig. Zur Korrektur der Zusammensetzung der Fällbadlösung kann es erforderlich werden, in die Dosierung der dem Fällbad zulaufenden Waschlösung einzutreten oder die Wasserdosierung zur Waschlösung zu verändern.

Bei einer anderen Ausführungsform des Verfahrens greift man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Betriebsbedingungen der Stufe (b) oder/und der Stufe (e) ein. Ergeben die Messungen eine unerwünschte Verschiebung des Verhältnisses NMNO/H₂O der Spinnlösung, so kann dies in der Stufe (b) korrigiert werden, indem die Wasserverdampfung in dieser Stufe gedrosselt oder verstärkt wird. Ebenso kann die Konzentration der in die Stufe (a) zurückzuführenden wässrigen Aminoxidlösung durch Eingriff in die Konzentrierungs- bzw. Eindampfungsstufe geregelt werden.

Die Aufgabe wird ferner bei der eingangs genannten Vorrichtung erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß in der Leitung oder einem Behälter, die bzw. der die zu überwachende Lösung enthält, ein Gerät zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösung angeordnet ist, und daß das Meßgerät zusammen mit strömungsmäßig vorgeschalteten Dosierorganen oder Eindampfeinrichtungen Regelkreise zur Regelung der Lösungszusammensetzung bildet. Das Meßgerät liefert einen Meßwert der Lösung, wie z.B. ihre Dielektrizitätskonstante oder Dichte, der zu Signalen für die Verstellung von Stellorganen, wie z.B. der Änderung der Geschwindigkeit von Dosierorganen oder der Änderung der Wärmeleistung der Eindampfapparate umgeformt wird.



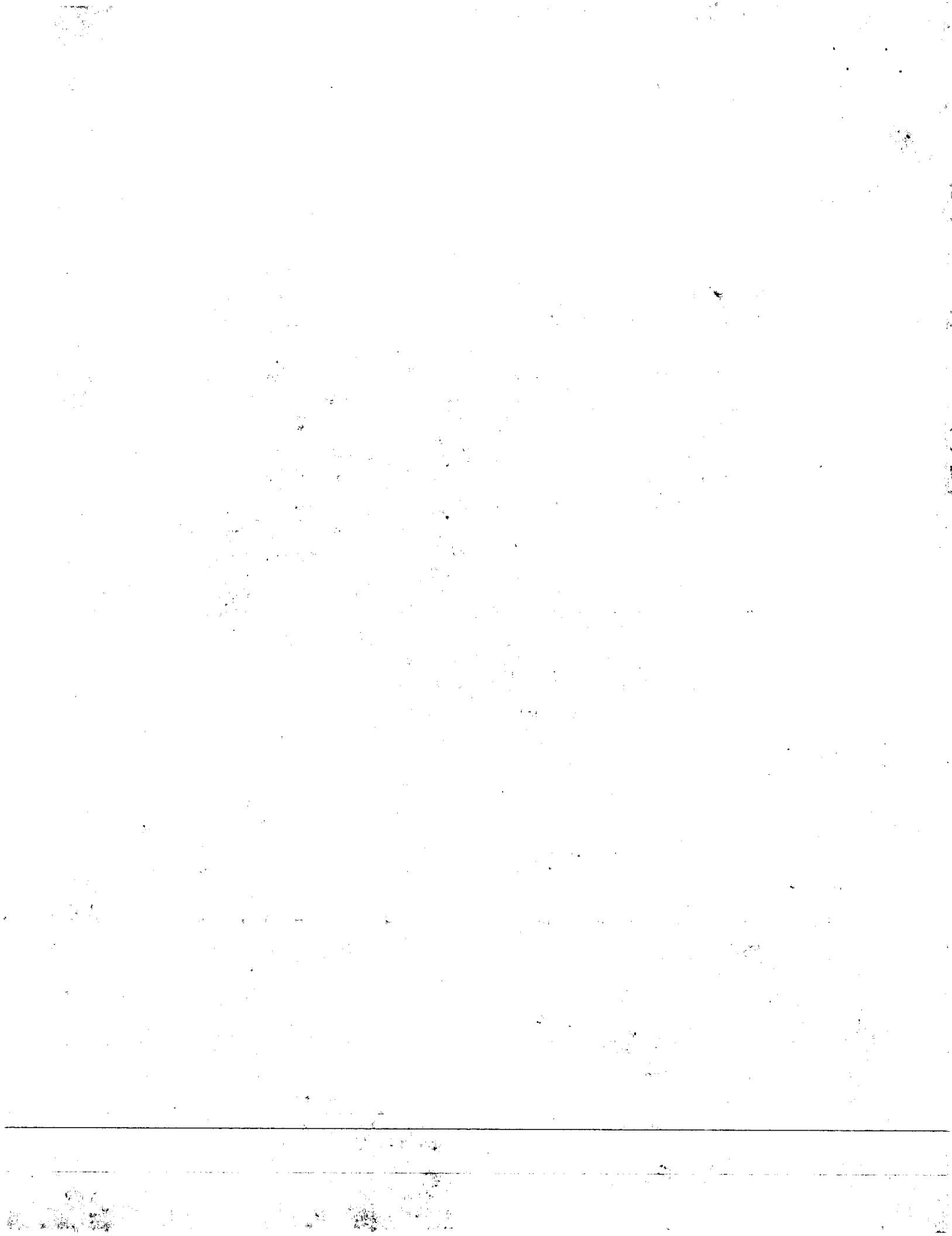
- 6 -

Vorzugsweise umfaßt das Meßgerät ein Gerät zur Messung der Lösungstemperatur und eine Temperaturkompensation des von dem Meßgerät gelieferten Meßwerts. Das Meßgerät liefert dann schon temperaturkompensierte Meßwerte, so daß ein unmittelbarer Vergleich mit den vorgegebenen, auf eine bestimmte Temperatur bezogenen Werten der Lösungen von Soll-Zusammensetzung möglich ist.

Die Erfindung wird nachfolgend an Hand der Zeichnung näher erläutert, die das schematische Fließbild einer Ausführungsform der erfindungsgemäßen Vorrichtung zeigt.

Wasserhaltiger Zellstoff und ein Gemisch aus N-Methylmorpholin-N-oxid (NMMO) und Wasser werden durch die Dosierorgane 1^a bzw. 1^b in einen kontinuierlich arbeitenden Anmaischeapparat 2 eingespeist. Der Apparat 2 kann ein Mehrwellenapparat sein, wie er in DE-C-198 37 210.8 beschrieben ist. Dem Apparat 2 ist eine Löse- und Eindampfungseinrichtung 3 nachgeschaltet, in der die in Apparat 2 gebildete Suspension aus Zellstoff und NMMO/H₂O durch Wärmezufuhr und Unterdruck unter Wasserverdampfung in eine Lösung überführt wird. Ein geeignetes Verfahren hierzu ist aus DE-A-44 41 468.8 bekannt. An die Löseeinrichtung 3 schließt sich über eine Leitung 8 ein Extrusionswerkzeug 4 an, durch das die Spinnlösung über einen Luftspalt in ein Fällbad 5 extrudiert wird. Je nach Art der Beschaffenheit des Extrusionswerkzeugs und der folgenden Operationen können Fasern, Filamente, Folien oder andere Formkörper erhalten werden. Der so erhaltene Formkörper 6 wird über ein Abzugsorgan 7 einer Waschstufe 10 zugeführt, in der restliches Aminoxid aus dem Formkörper 6 ausgewaschen wird.

Erfindungsgemäß ist in der Leitung 8 zwischen der Löseeinrichtung 3 und dem Extrusionswerkzeug 4 ein Meßgerät 9 zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft, z.B. der Dielektrizitätskonstanten oder der Dichte der Lösung installiert. Das Meßgerät 9 liefert



- 7 -

ein temperaturkorrigiertes Signal an einen Mikroprozessor 12, der Abweichungen vom Sollwert der Lösung feststellt und Stellsignale über die Signalleitung 13 an das Dosierorgan 1^a für den Zellstoff, die Signalleitung 15 an das Dosierorgan 1^b für das Lösungsmittelgemisch und die Signalleitung 14 an die Löse- und Eindampfungseinrichtung 2 gibt.

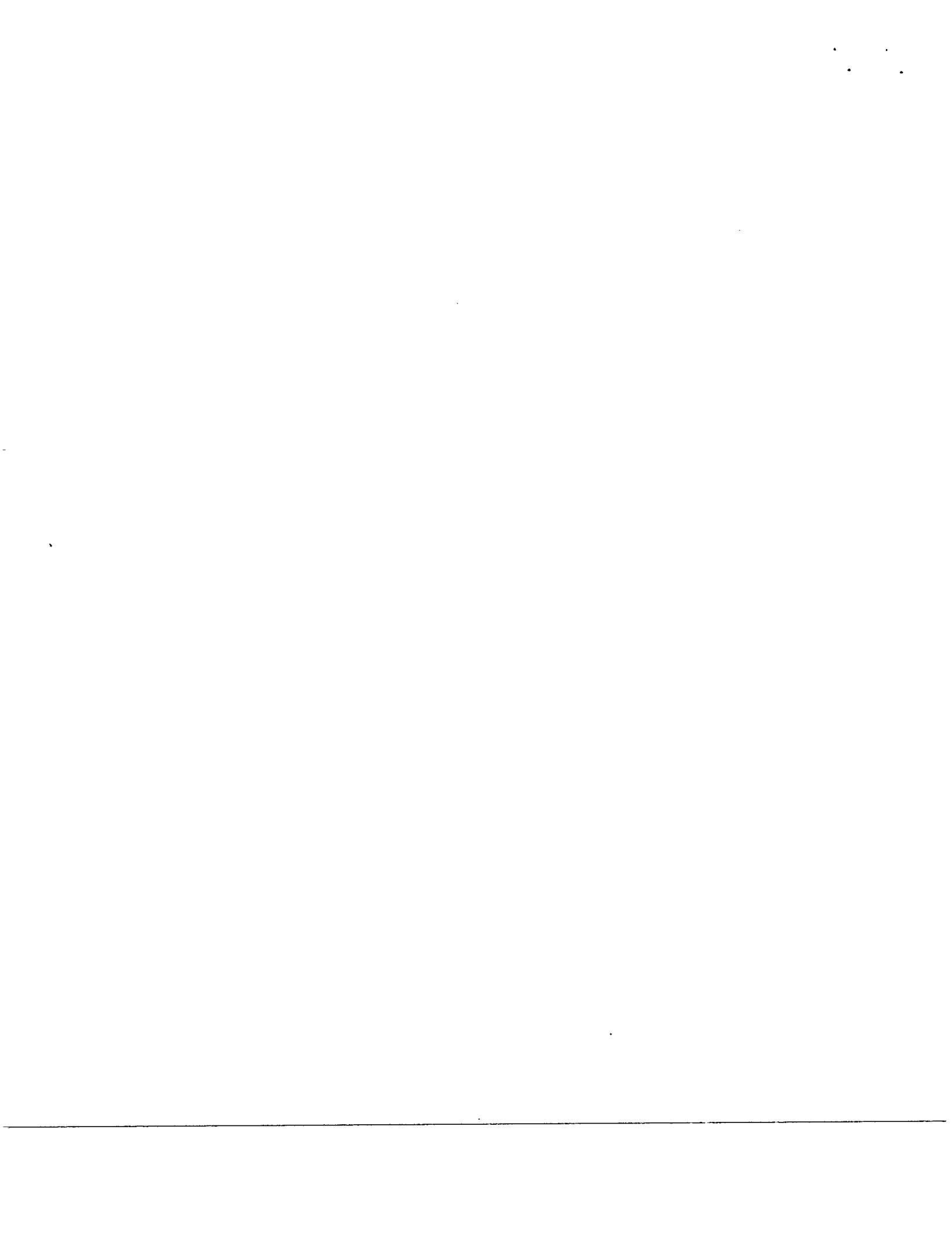
Wie aus der Zeichnung ersichtlich, wird die Waschlösung aus der Waschstufe 10 über eine Leitung 24 dem Fällbadbehälter 5 zugeführt. Ein Meßgerät 11 in dieser Leitung stellt die Zusammensetzung der verbrauchten Waschlösung in der Leitung 24 fest und regelt über die Signalleitung 18 mit dem Mikroprozessor 16 das Ventil 17 für die Wasserzugabe zur Waschstufe 10. Die verbrauchte Fällbadlösung wird durch eine Leitung 19, die auch Reinigungseinrichtungen (nicht dargestellt) enthält, einer Eindampfstufe 20 zugeführt, in der die Lösung auf eine vorgegebene Aminoxid-Konzentration eingedampft wird. Die Konzentration der eingedampften Lösung wird durch Messung einer Eigenschaft mittels des Meßgeräts 21 und Ist-Soll-Vergleich durch den Prozessor 22 in ein Stellsignal umgeformt, das über die Signalleitung 23 zur Einstellung der Eindampfbedingungen der Eindampfstufe 20 dient.



- 8 -

Patentansprüche

1. Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en) bei der Herstellung von cellulosischen Formkörpern, bei dem man
 - (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt,
 - (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet,
 - (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Fällbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert,
 - (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewaschen wird, und
 - (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und/oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eigenschaft der Lösungen gemessen und aufgrund des Meßwertes die Zusammensetzung der Lösungen geregelt wird, dadurch gekennzeichnet, daß man eine nicht-optische Eigenschaft oder ein physikalisches Verhalten wenigstens einer der genannten Lösungen mißt und die Abweichung(en) des Meßwertes bzw. der Meßwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung(en) dieser Lösung(en) benutzt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man die nicht-optische Eigenschaft der Lösung unter der Dielektrizitätskonstanten, der induktiven Leitfähigkeit, der Mikrowellenabsorption, der Dichte, dem Wassergehalt und der Ultraschallgeschwindigkeit auswählt.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß man die Temperatur der Lösung bei oder kurz vor oder nach der



- 9 -

Messung der Eigenschaft mißt und den Meßwert der Eigenschaft aufgrund der Meßtemperatur kompensiert.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man die Eigenschaft in-line mißt.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Dosierung der Komponenten in Stufe (a), (c) oder (d) eingreift.

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Betriebsbedingungen der Stufe (b) und/oder (e) eingreift.

7. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 6, mit

einem mit Dosierorganen (1^a,1^b) bestückten Anmaischeapparat (2), einer an den Anmaischeapparat (2) angeschlossenen Löse- und Eindampfeinrichtung (3),

einer an die Löse- und Eindampfeinrichtung (3) über eine Leitung (8) angeschlossenen Extrusionseinrichtung (4) mit einem nachgeschalteten Fällbad (5),

wenigstens einem Waschbad, das eine verdünnte wässrige Aminoxidlösung enthält, und

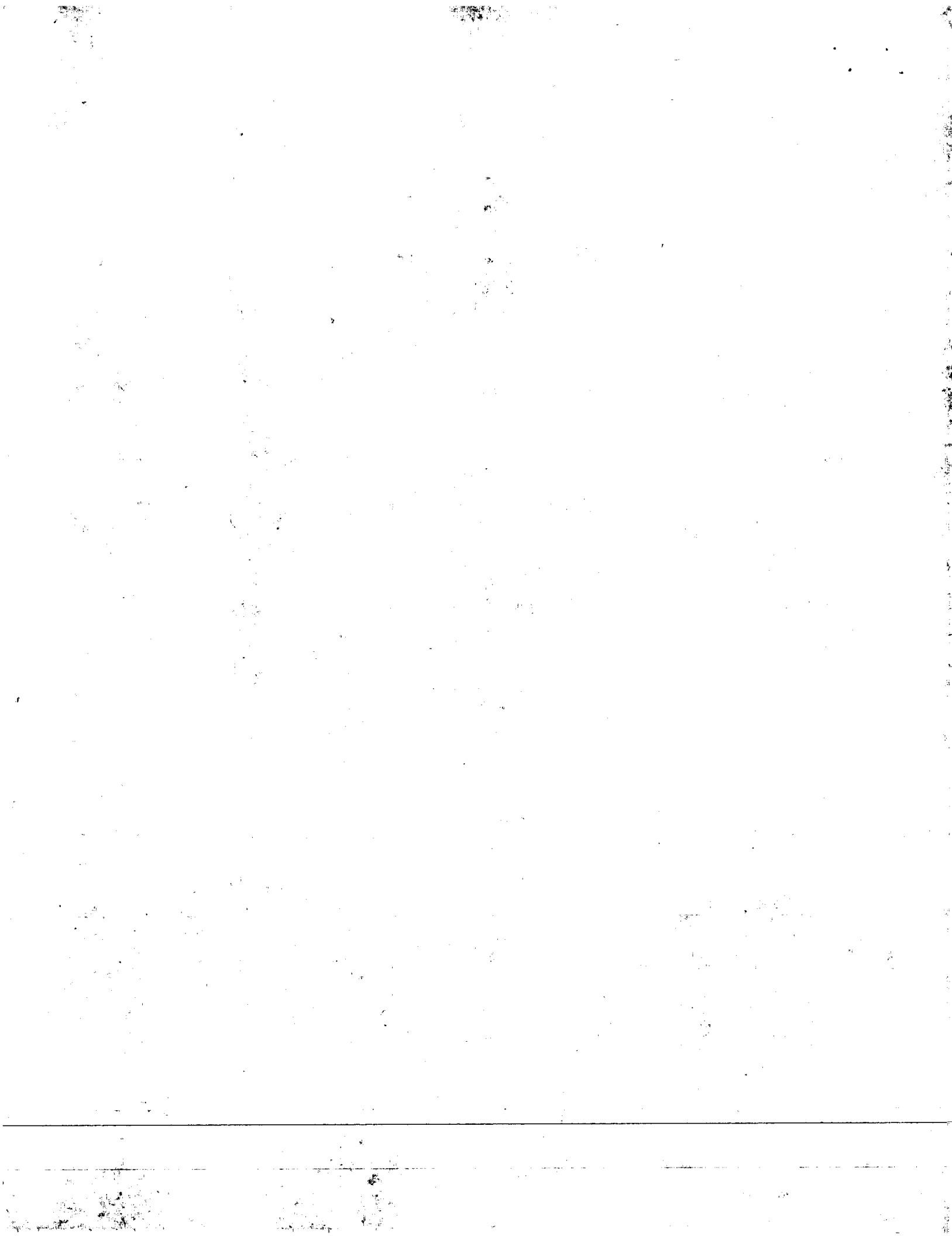
Einrichtungen zur Messung einer Eigenschaft der Lösung(en) zwecks Überwachung ihrer Zusammensetzung,

dadurch gekennzeichnet, daß in der Leitung (8,19,24) oder einem Behälter, die bzw. der die zu überwachende Lösung enthält, ein Gerät (9,21,11) zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösung angeordnet ist, und daß das Meßgerät zusammen mit vorgeschalteten Dosierorganen (1^a,1^b; 17) oder Eindampfeinrichtungen (3;20) Regelkreise (13,14,15; 18; 23) für die Regelung der Lösungszusammensetzung bildet.

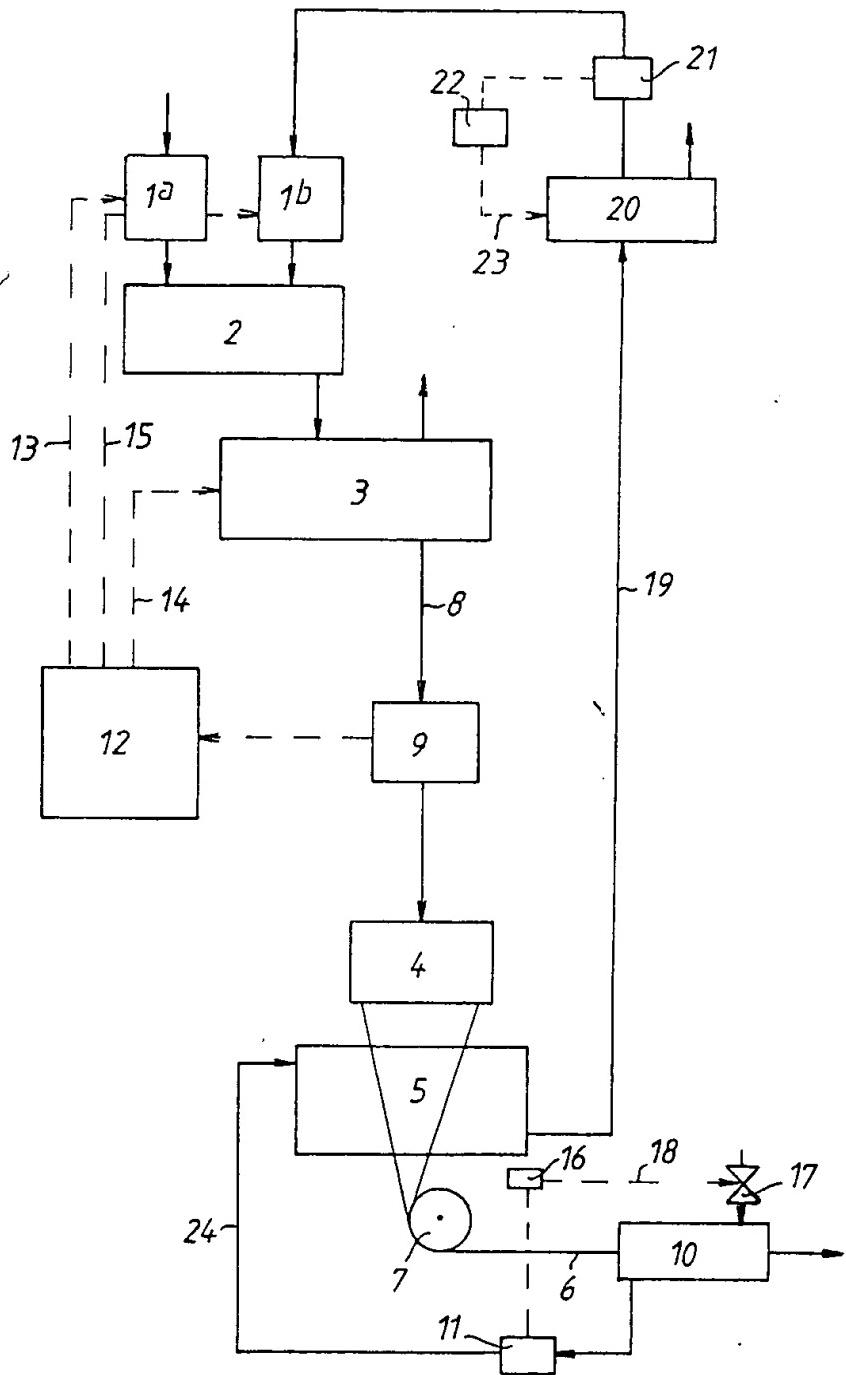


- 10 -

8. Vorrichtung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß das Meßgerät (9, 11, 21) ein Gerät zur Messung der Lösungstemperatur und eine Temperaturkompensation des Meßwerts des Geräts umfaßt.



1/1



JC13 Rec'd PCT/PTO 26 MAR 2002

**(12) NACH DEM VERTRÄG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG**

**(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro**



**(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
12. April 2001 (12.04.2001)**

PCT

**(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/25512 A2**

(51) Internationale Patentklassifikation⁷:

D01D

(71) Anmelder (*für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US*): ALCERU SCHWARZA GMBH [DE/DE]; Breitscheidstr. 148, 07407 Rudolstadt (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE00/03409

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): NIEMZ, Frank-Günther [DE/DE]; An der Brücke 19, 07407 Rudolstadt (DE). MEYER, Wilhelm [DE/DE]; Unerpreilipp, Ortsstrasse 1, 07407 Rudolstadt (DE). MAINZER-ALTHOF, Tanja [DE/DE]; Stadtschreiberei 10, 63571 Gelnhausen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:
29. September 2000 (29.09.2000)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

Angaben zur Priorisierung:

199.47.908.9	6. Oktober 1999 (06.10.1999)	DE
199.49.727.3	15. Oktober 1999 (15.10.1999)	DE

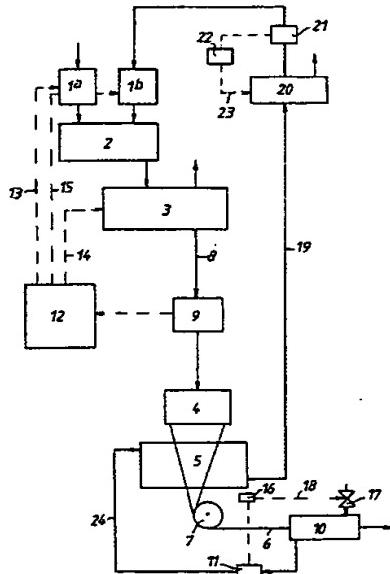
68, 53773 Hennef (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DK,

{Fortsetzung auf der nächsten Seite}

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR REGULATING THE COMPOSITION OF SOLUTION(S)

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR REGELUNG DER ZUSAMMENSETZUNG VON LÖSUNG(EN)



(57) Abstract: A method for regulating the composition of a solution(s) in the production of cellulosic mouldings comprises (a) mixing cellulose and a water containing amine oxide to form a suspension, (b) forming a cellulose solution from the suspension by evaporating water, (c) extruding the cellulose solution through an air gap in a precipitation bath containing an aqueous amine oxide solution, where it coagulates into the moulded shape, (d) passing the moulding through an aqueous wash solution, in which the residual amine oxide is washed out of the moulding and (e) recycling the aqueous amine oxide solutions from stages (c) and/or (d) to stage (a) after concentration. A property of the solutions is measured and on the basis of the measured value the composition of the solutions is controlled, whereby a non-optical property or a physical behaviour of at least one of the said solutions is measured and the deviation(s) of the measured value(s) from a preset value used for control of the composition(s) of the said solution(s). The inventive method allows a precise monitoring of the composition of the extruded solution.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 01/25512 A2



DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL,
IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU,
LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT,
RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- *Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.*

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

- (84) Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent

(57) Zusammenfassung: Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en) bei der Herstellung von cellulosischen Formkörpern, bei dem man (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt, (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet, (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Fällbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert, (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewaschen wird, und (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und/oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eigenschaft der Lösungen gemessen und aufgrund des Messwertes die Zusammensetzung der Lösungen geregelt wird, dadurch gekennzeichnet, dass man eine nicht-optische Eigenschaft oder ein physikalisches Verhalten wenigstens einer der genannten Lösungen misst und die Abweichung(en) des Messwertes bzw. der Messwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung(en) dieser Lösung(en) benutzt. das Verfahren erlaubt eine genaue Überwachung der Zusammensetzung der Extrusionslösung.

**Verfahren und Vorrichtung zur Regelung
der Zusammensetzung von Lösung(en)**

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en) bei der Herstellung von cellullosischen Formkörpern, bei dem man (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt, (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet, (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Fällbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert, (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewaschen wird, und (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und/oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eigenschaft bzw. ein physikalisches Verhalten der Lösungen gemessen und aufgrund der Meßwerte die Zusammensetzung der Lösungen geregelt werden.

Die Erfindung betrifft auch eine Vorrichtung zur Durchführung dieses Verfahrens mit einem mit Dosierorganen bestückten Anmaischeapparat, einer an den Anmaischeapparat angeschlossenen Löse- und Eindampfungseinrichtung, einer an die Löse- und Eindampfungseinrichtung über eine Leitung angeschlossenen Extrusionseinrichtung mit einem nachgeschalteten Fällbad, wenigstens einem Waschbad, das eine stark verdünnte, wässrige Aminoxidlösung enthält, sowie Einrichtungen zur Messung einer Eigenschaft der Lösung(en) zwecks Überwachung ihrer Zusammensetzung. Unter die Eigenschaft der Celluloselösung soll im Rahmen der vorliegenden Erfindung auch ein messbares physikalisches Verhalten der Lösung fallen.

- 2 -

Die Eigenschaften der nach dem Aminoxidverfahren hergestellten cellullosischen Formkörper, insbesondere die textilphysikalischen Eigenschaften der erzeugten Fasern und Filamente hängen in hohem Maße von der Zusammensetzung der Extrusionslösung ab. Zur Einhaltung optimaler Eigenschaften ist es daher erwünscht, die Zusammensetzung der Lösung zu überwachen und Schwankungen in engen Grenzen zu halten. Bei einem kontinuierlichen Verfahren wie dem vorliegenden Aminoxidverfahren ist die Prozessüberwachung für eine wirtschaftliche Fahrweise von Bedeutung. Es ist daher wichtig, auch die Konzentrationen der wässrigen Aminoxidlösungen in den Stufen (c), (d) und (e) zu messen und die Lösungszusammensetzungen zu regeln.

Aus WO 94/28212 ist es bekannt, von Zeit zu Zeit eine Probe der dem Extrusionsapparat zufließenden Spinnlösung zu entnehmen und ihren Brechungsindex zu messen. Dieser soll bei 60°C in dem Bereich von 1,489 bis 1,491 liegen, damit Extrusionsprodukte mit zufriedenstellenden Eigenschaften erhalten werden. Es ist ferner bekannt, den Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösungen innerhalb bestimmter Grenzen zu halten. So soll der Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösung für das Fällbad bei 60°C zwischen 1,3644 und 1,3708 liegen, während für die konzentrierte Aminoxidlösung für die Bildung der ZellstoffSuspension der Brechungsindex in dem Bereich von 1,4620 bis 1,4628 liegen kann, ohne daß Dosierorgane betätigt oder die Verdampferbedingungen verändert werden müssen. Die Überwachung des Brechungsindex der Lösung in einem mehr oder weniger breiten Bereich erlaubt keine exakte Regelung der Zusammensetzung der Lösung. Außerdem versagt dieses Verfahren bei Lösungen mit starker Lichtabsorption und/oder -streuung.

Der vorliegenden Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von cellullosischen Formkörpern nach dem Aminoxidverfahren zu schaffen, bei dem die Zusammensetzung der Spinnlösung genau überwacht werden kann. Die Regelung der Zusammensetzung soll genauer erfolgen als dies aufgrund eines Brechungs-

- 3 -

indexbereiches möglich ist. Darüber hinaus soll ein Verfahren zur Herstellung von cellulosischen Formkörpern nach dem Aminoxidverfahren geschaffen werden, bei dem die Zusammensetzung der Lösung mit möglichst geringer Verzögerung geregelt wird, damit auftretende Schwankungen in der Zusammensetzung in engen Grenzen gehalten werden können. Insbesondere soll auch ein Verfahren zur Herstellung cellulosischer Formkörper nach dem Aminoxidverfahren geschaffen werden, bei dem die Zusammensetzungen der verschiedenen im Verfahrensverlauf auftretenden Lösungen auch dann geregelt werden können, wenn die Brechungsindexmessung unbrauchbar ist, weil die Lösungen das Licht zu stark absorbieren oder streuen. Schließlich soll auch eine Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens geschaffen werden, durch die Änderungen der Zusammensetzung von Lösungen des Aminoxidverfahrens, und zwar sowohl Spinnlösungen als auch cellulosefreien, wässrigen Aminoxidlösungen in engen Grenzen gehalten oder eliminiert werden können. Weitere Vorteile der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung.

Diese Aufgabe wird bei dem eingangs genannten Verfahren erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß man eine nicht-optische Eigenschaft wenigstens einer der genannten Lösungen mißt und die Abweichung(en) des Meßwerts bzw. der Meßwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung(en) dieser Lösung(en) benutzt. Anders als das oben genannte Verfahren mit Messung des Brechungsindexes wird erfindungsgemäß ein enger Toleranzbereich der Meßgröße vorgegeben. Abweichungen des Meßwertes von einem bestimmten Sollwert lösen unmittelbar einen Eingriff an den Stellgliedern des Regelkreises aus. Es wird daher eine striktere Regelung der Lösungszusammensetzung erreicht als sie möglich ist, wenn die Regelung erst aktiviert wird, wenn der Meßwert einen vorgegebenen Toleranzbereich verläßt. Die Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösungen setzt zudem nicht die Durchsichtigkeit der Lösungen für das Licht der benutzten Wellenlänge voraus.

- 4 -

Daher können auch Spinnlösungen, die definierte Anteile an Zusatzstoffen, wie z.B. Titandioxid, Farb- oder Füllstoffe enthalten, und im Prozess anfallende Aminoxidlösungen, die durch Verunreinigungen stark gefärbt sind, überwacht und in Bezug auf ihre Konzentration geregelt werden.

Nach der bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wählt man als die zu messende nicht-optische Eigenschaft der Lösung die Dielektrizitätskonstante, die (elektrische) Leitfähigkeit, die Mikrowellenintensität und -geschwindigkeit, die Dichte, den Wassergehalt oder die Ultraschallgeschwindigkeit. Durchsichtige und un-durchsichtige Lösungen im Prozess können mittels Messungen der gleichen Eigenschaft überwacht werden, wodurch der Meß- und Regelaufwand minimiert werden kann. Der Wassergehalt kann nach Karl-Fischer bestimmt werden.

Nach der bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens mißt man die Temperatur der Lösung bei oder kurz vor oder nach der Messung einer der genannten Lösungseigenschaften und kompensiert man den Meßwert aufgrund der gemessenen Temperatur. Da die Temperatur der Lösung variieren kann, müssen die Meßwerte auf eine Bezugstemperatur umgerechnet werden, bei der der Meßwert der betreffenden Eigenschaft der Lösung von Soll-Zusammensetzung bekannt ist, mit dem der aktuelle Meßwert zu vergleichen ist. Die Bezugstemperatur, auf die die Meßwerte umgerechnet werden, ist beispielsweise 50°C oder 60°C.

Vorzugsweise mißt man die Eigenschaft der Lösung in-line. Die in-line-Messungen erlauben nicht nur eine schnelle Ermittlung der Lösungszusammensetzung bei geringem Strömungswiderstand, sondern sie vermeiden bei Spinnlösungen auch das durch die Zersetzung der Lösung bestehende Sicherheitsrisiko, das beispielsweise in Toträumen der Leitung (z.B. Probenahmestutzen) durch das mögliche Einsetzen von run-away-Reaktionen besteht.

- 5 -

Bei einer Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens greift man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Dosierung der Komponenten in Stufe (a), (b) bzw. (d) ein. Wird z.B. eine Änderung der Zusammensetzung der Spinnlösung aufgrund der Eigenschaftsmessung festgestellt, ist ein Eingriff in die Dosierung der Komponenten Zellstoff und/oder Lösungsmittel NMMO/H₂O notwendig. Zur Korrektur der Zusammensetzung der Fällbadlösung kann es erforderlich werden, in die Dosierung der dem Fällbad zulaufenden Waschlösung einzugreifen oder die Wasserdosierung zur Waschlösung zu verändern.

Bei einer anderen Ausführungsform des Verfahrens greift man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Betriebsbedingungen der Stufe (b) oder/und der Stufe (e) ein. Ergeben die Messungen eine unerwünschte Verschiebung des Verhältnisses NMMO/H₂O der Spinnlösung, so kann dies in der Stufe (b) korrigiert werden, indem die Wasserverdampfung in dieser Stufe gedrosselt oder verstärkt wird. Ebenso kann die Konzentration der in die Stufe (a) zurückzuführenden wässrigen Aminoxidlösung durch Eingriff in die Konzentrations- bzw. Eindampfungsstufe geregelt werden.

Die Aufgabe wird ferner bei der eingangs genannten Vorrichtung erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß in der Leitung oder einem Behälter, die bzw. der die zu überwachende Lösung enthält, ein Gerät zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösung angeordnet ist, und daß das Meßgerät zusammen mit strömungsmäßig vorgesetzten Dosierorganen oder Eindampfeinrichtungen Regelkreise zur Regelung der Lösungszusammensetzung bildet. Das Meßgerät liefert einen Meßwert der Lösung, wie z.B. ihre Dielektrizitätskonstante oder Dichte, der zu Signalen für die Verstellung von Stellorganen, wie z.B. der Änderung der Geschwindigkeit von Dosierorganen oder der Änderung der Wärmeleistung der Eindampfapparate umgeformt wird.

- 6 -

Vorzugsweise umfaßt das Meßgerät ein Gerät zur Messung der Lösungstemperatur und eine Temperaturkompensation des von dem Meßgerät gelieferten Meßwerts. Das Meßgerät liefert dann schon temperaturkompensierte Meßwerte, so daß ein unmittelbarer Vergleich mit den vorgegebenen, auf eine bestimmte Temperatur bezogenen Werten der Lösungen von Soll-Zusammensetzung möglich ist.

Die Erfindung wird nachfolgend an Hand der Zeichnung näher erläutert, die das schematische Fließbild einer Ausführungsform der erfindungsgemäßen Vorrichtung zeigt.

Wasserhaltiger Zellstoff und ein Gemisch aus N-Methylmorpholin-N-oxid (NMMO) und Wasser werden durch die Dosierorgane 1^a bzw. 1^b in einen kontinuierlich arbeitenden Anmaischeapparat 2 eingespeist. Der Apparat 2 kann ein Mehrwellenapparat sein, wie er in DE-C-198 37 210.8 beschrieben ist. Dem Apparat 2 ist eine Löse- und Eindampfungseinrichtung 3 nachgeschaltet, in der die in Apparat 2 gebildete Suspension aus Zellstoff und NMMO/H₂O durch Wärmezufuhr und Unterdruck unter Wasserverdampfung in eine Lösung überführt wird. Ein geeignetes Verfahren hierzu ist aus DE-A-44 41 468.8 bekannt. An die Löseeinrichtung 3 schließt sich über eine Leitung 8 ein Extrusionswerkzeug 4 an, durch das die Spinnlösung über einen Luftspalt in ein Fällbad 5 extrudiert wird. Je nach Art der Beschaffenheit des Extrusionswerkzeugs und der folgenden Operationen können Fasern, Filamente, Folien oder andere Formkörper erhalten werden. Der so erhaltene Formkörper 6 wird über ein Abzugsorgan 7 einer Waschstufe 10 zugeführt, in der restliches Aminoxid aus dem Formkörper 6 ausgewaschen wird.

Erfindungsgemäß ist in der Leitung 8 zwischen der Löseeinrichtung 3 und dem Extrusionswerkzeug 4 ein Meßgerät 9 zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft, z.B. der Dielektrizitätskonstanten oder der Dichte der Lösung installiert. Das Meßgerät 9 liefert

- 7 -

ein temperaturkorrigiertes Signal an einen Mikroprozessor 12, der Abweichungen vom Sollwert der Lösung feststellt und Stellsignale über die Signalleitung 13 an das Dosierorgan 1^a für den Zellstoff, die Signalleitung 15 an das Dosierorgan 1^b für das Lösungsmittelgemisch und die Signalleitung 14 an die Löse- und Eindampfungseinrichtung 2 gibt.

Wie aus der Zeichnung ersichtlich, wird die Waschlösung aus der Waschstufe 10 über eine Leitung 24 dem Fällbadbehälter 5 zugeführt. Ein Meßgerät 11 in dieser Leitung stellt die Zusammensetzung der verbrauchten Waschlösung in der Leitung 24 fest und regelt über die Signalleitung 18 mit dem Mikroprozessor 16 das Ventil 17 für die Wasserzugabe zur Waschstufe 10. Die verbrauchte Fällbadlösung wird durch eine Leitung 19, die auch Reinigungseinrichtungen (nicht dargestellt) enthält, einer Eindampfstufe 20 zugeführt, in der die Lösung auf eine vorgegebene Aminoxid-Konzentration eingedampft wird. Die Konzentration der eingedampften Lösung wird durch Messung einer Eigenschaft mittels des Meßgeräts 21 und Ist-Soll-Vergleich durch den Prozessor 22 in ein Stellsignal umgeformt, das über die Signalleitung 23 zur Einstellung der Eindampfbedingungen der Eindampfstufe 20 dient.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en) bei der Herstellung von cellullosischen Formkörpern, bei dem man
 - (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt,
 - (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet,
 - (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Fällbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert,
 - (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewaschen wird, und
 - (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und/oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt,
wobei eine Eigenschaft der Lösungen gemessen und aufgrund des Meßwertes die Zusammensetzung der Lösungen geregelt wird,
dadurch gekennzeichnet, daß man eine nicht-optische Eigenschaft oder ein physikalisches Verhalten wenigstens einer der genannten Lösungen mißt und die Abweichung(en) des Meßwertes bzw. der Meßwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung(en) dieser Lösung(en) benutzt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man die nicht-optische Eigenschaft der Lösung unter der Dielektrizitätskonstanten, der induktiven Leitfähigkeit, der Mikrowellenabsorption, der Dichte, dem Wassergehalt und der Ultraschallgeschwindigkeit auswählt.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß man die Temperatur der Lösung bei oder kurz vor oder nach der

- 9 -

Messung der Eigenschaft mißt und den Meßwert der Eigenschaft aufgrund der Meßtemperatur kompensiert.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man die Eigenschaft in-line mißt.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Dosierung der Komponenten in Stufe (a), (c) oder (d) eingreift.

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Betriebsbedingungen der Stufe (b) und/oder (e) eingreift.

7. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 6, mit

einem mit Dosierorganen ($1^a, 1^b$) bestückten Anmaischeapparat (2), einer an den Anmaischeapparat (2) angeschlossenen Löse- und Eindampfeinrichtung (3),

einer an die Löse- und Eindampfeinrichtung (3) über eine Leitung (8) angeschlossenen Extrusionseinrichtung (4) mit einem nachgeschalteten Fällbad (5),

wenigstens einem Waschbad, das eine verdünnte wässrige Aminoxidlösung enthält, und

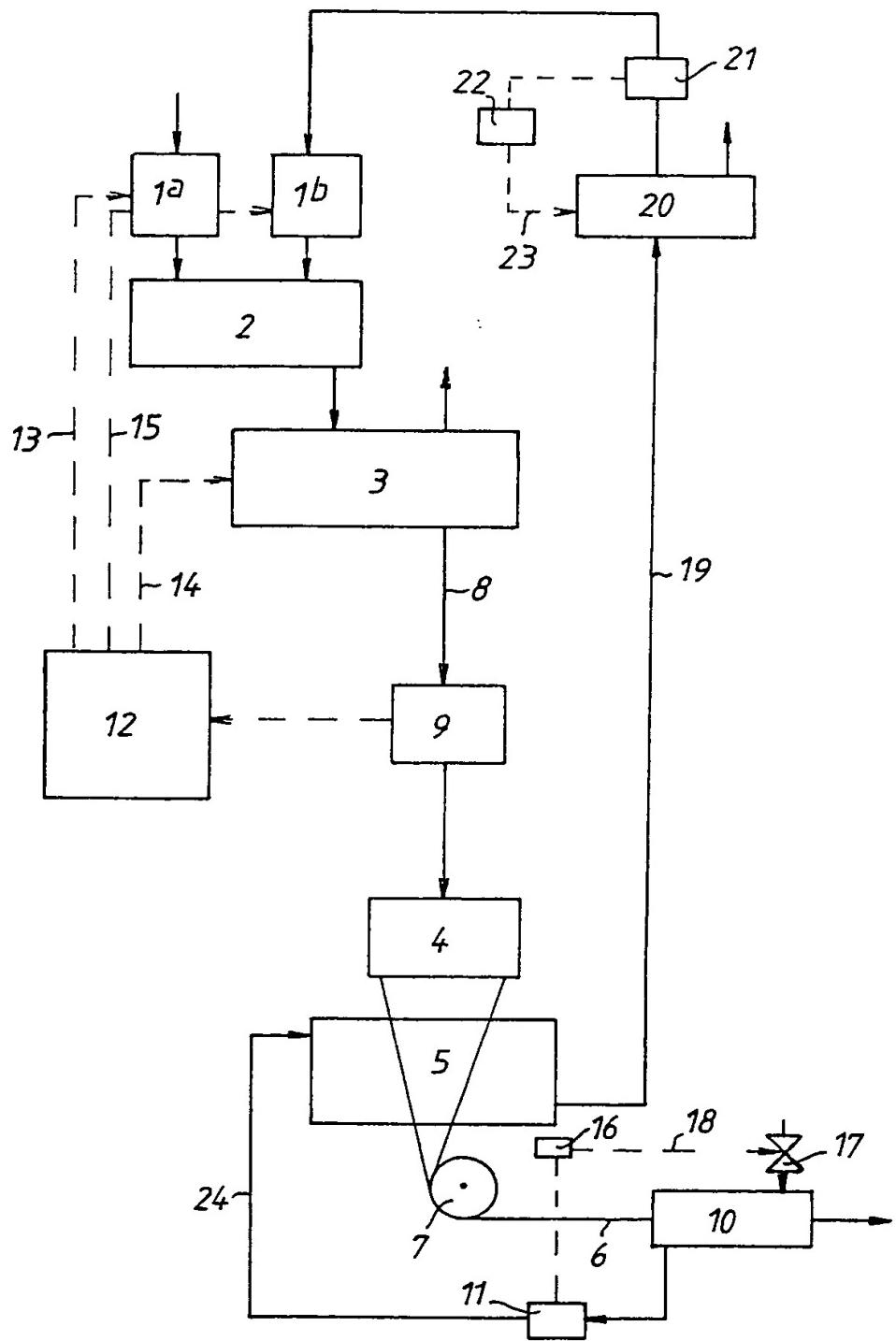
Einrichtungen zur Messung einer Eigenschaft der Lösung(en) zwecks Überwachung ihrer Zusammensetzung,

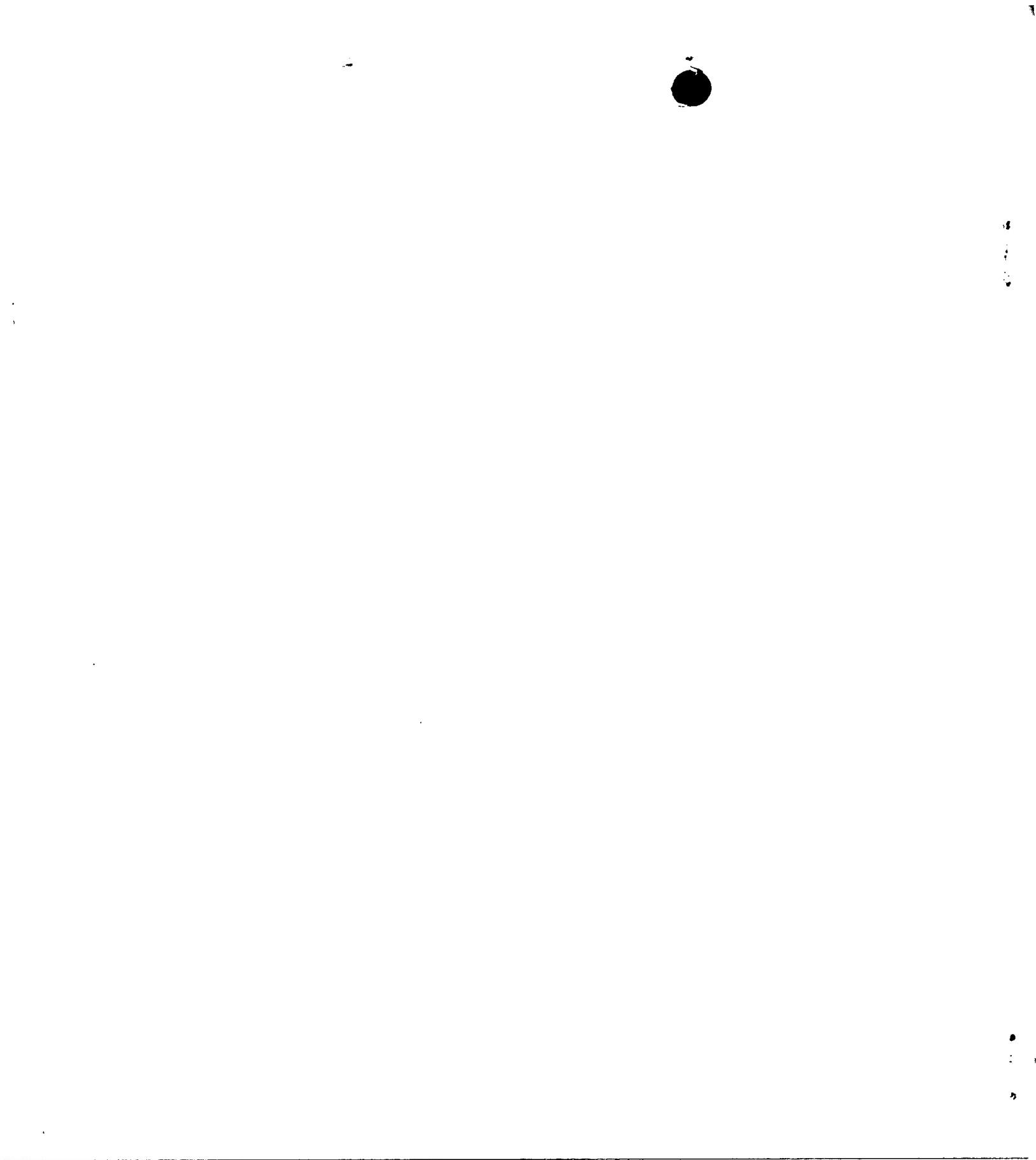
dadurch gekennzeichnet, daß in der Leitung (8,19,24) oder einem Behälter, die bzw. der die zu überwachende Lösung enthält, ein Gerät (9,21,11) zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösung angeordnet ist, und daß das Meßgerät zusammen mit vorgeschalteten Dosierorganen ($1^a, 1^b$; 17) oder Eindampfeinrichtungen (3;20) Regelkreise (13,14,15; 18; 23) für die Regelung der Lösungszusammensetzung bildet.

- 10 -

8. Vorrichtung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß das Meßgerät (9, 11, 21) ein Gerät zur Messung der Lösungstemperatur und eine Temperaturkompensation des Meßwerts des Geräts umfaßt.

1/1





13 T

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTENS**

REC'D 16 JAN 2002

PCT

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Annehmers oder Anwalts Alc 5/PCT	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)
Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03409	Internationales Anmelde datum (<i>Tag/Monat/Jahr</i>) 25/09/2000	Prioritätsdatum (<i>Tag/Monat/Tag</i>) 06/10/1999

Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK
D01F2/00

Annehmer

ALCERU SCHWARZA GMBH et al.

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Annehmer gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

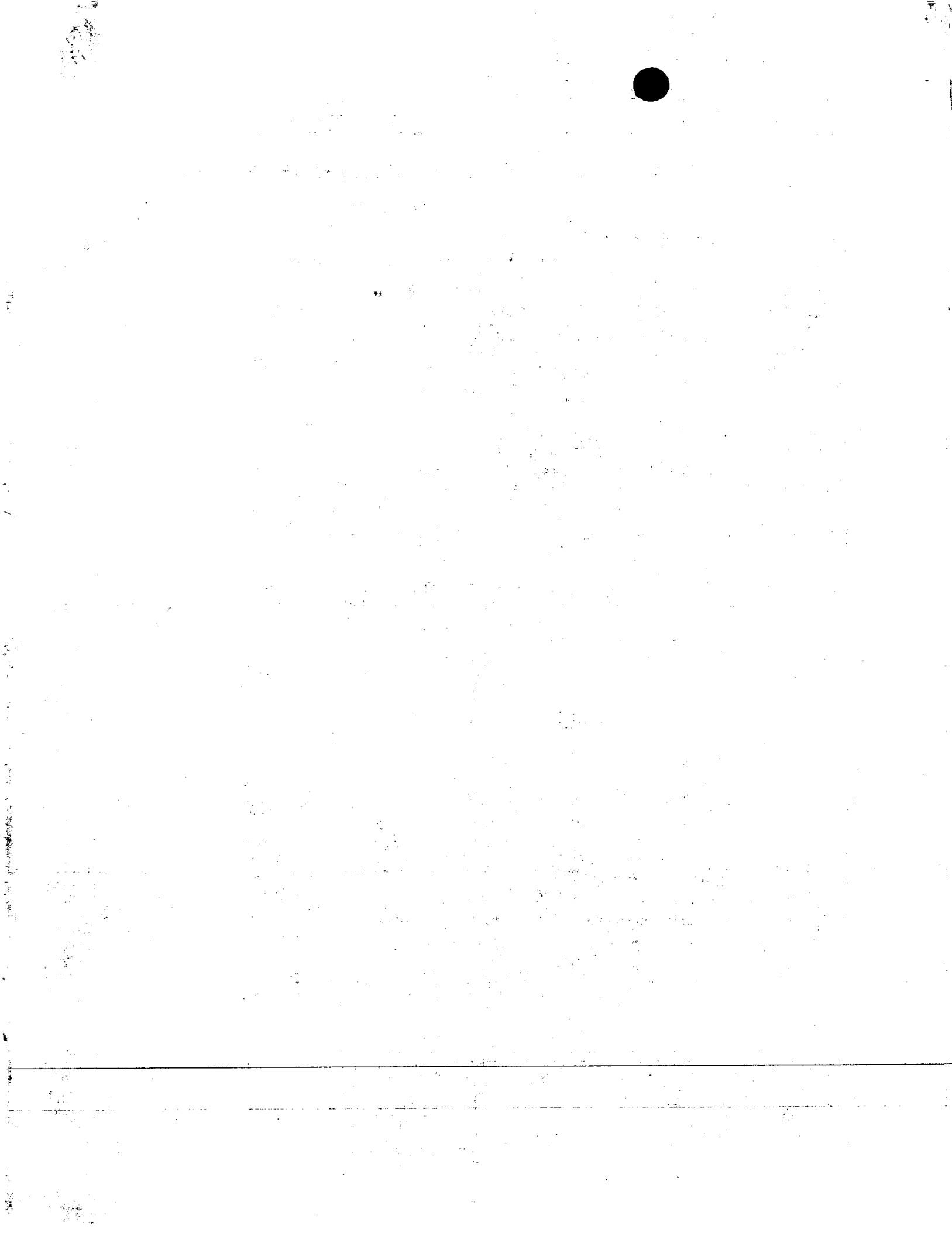
Diese Anlagen umfassen insgesamt 5 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I Grundlage des Berichts
- II Priorität
- III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 14/04/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 14.01.2002
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Lux, R Tel. Nr. +49 89 2399 8593





**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03409

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1,3-7 ursprüngliche Fassung

2,2a eingegangen am 27/09/2001 mit Schreiben vom 25/09/2001

Patentansprüche, Nr.:

1-7 eingegangen am 27/09/2001 mit Schreiben vom 25/09/2001

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.



**INTERNATIONALES VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03409

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- Beschreibung, Seiten:
 Ansprüche, Nr.:
 Zeichnungen, Blatt:

5. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

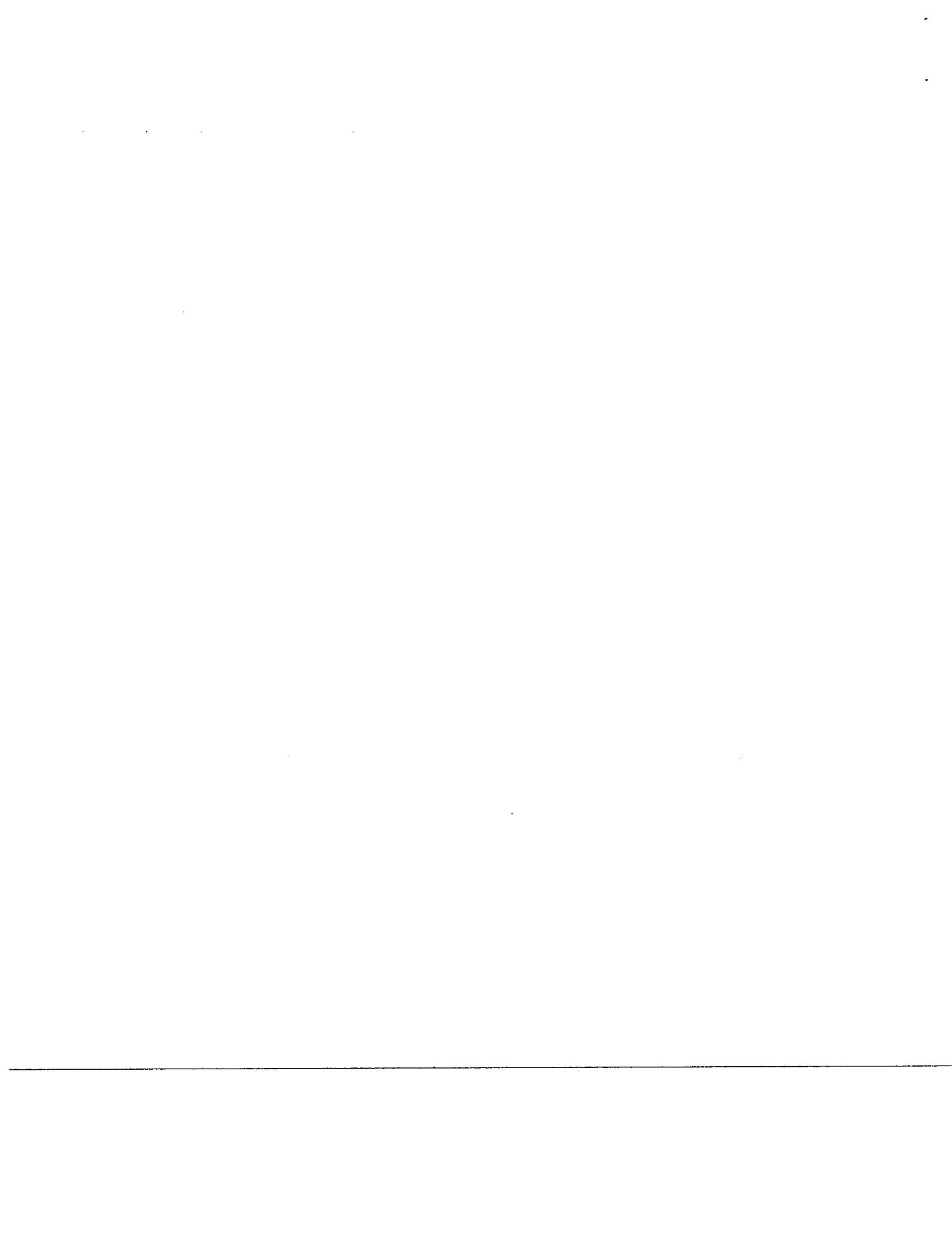
6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-7
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-7
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-7
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt



Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Die Gesamtheit der Verfahrens- und Vorrichtungsmerkmale der unabhängigen Ansprüche 1 und 6, insbesondere die im charakterisierenden Teil besagter Ansprüche definierten Regelgrößen, sind im zitierten Stand der Technik weder vorbeschrieben noch angedeutet.

Das Neuheitskriterium (Art. 33 (2) PCT) ist somit erfüllt.

Der Anmeldungsgegenstand (Verfahren und Vorrichtung) beruht aus folgenden Gründen auch auf einer erforderlichen Tätigkeit (Art. 33 (3) PCT):

Ein Verfahren und eine Vorrichtung gemäß der Oberbegriffe der vorliegenden Ansprüche 1 und 6 ist aus D1 (WO 94/28212) bekannt. Im Gegensatz zur Erfindung wird in D1 jedoch eine optische Eigenschaft, nämlich der Brechungsindex, gemessen und zur Prozeßsteuerung (Regelung) eingesetzt. Andere physikalische Parameter werden für diesen Zweck in D1 nicht angedeutet.

In D2 (EP-A-0 254 803) ist nun ein einfaches, wirtschaftliches Verfahren zur Herstellung von reinen, wässrigen Aminoxid/Cellulose-Lösungen beschrieben. In Spalte 2, Zeilen 43-52 wird hervorgehoben, daß die Konzentration des Endproduktes mit Hilfe des Brechungsindeks oder einer **Dichthemessung** überwacht (geregelt) werden kann und die damit erhältene Lösung für alle bekannten Anwendungsfälle (die Cellulosefaserherstellung wird in Spalte 1, Zeile 5 genannt) direkt einsetzbar ist.

Es wird an dieser Stelle also die Gleichwertigkeit der Messung einer optischen Eigenschaft der Lösung und einer nicht-optischen Lösungseigenschaft offenbart.

Aus folgenden Gründen war es für den Fachmann dennoch nicht naheliegend den in D1 zur Überwachung der Lösungskonzentration verwendeten Brechungsindex durch die Messung einer nicht-optischen Lösungseigenschaft (Dichte), wie in D2 beschrieben, zu ersetzen.

Die in D2 vorgeschlagene Dichthemessung wird an einer Zweikomponentenlösungen (Wasser/Aminoxid-Lösung), die Peroxidverunreinigungen enthält, ausgeführt, also nicht an einer cellulosehaltigen Spinnlösung, sondern am reinen, nur leicht gefärbten

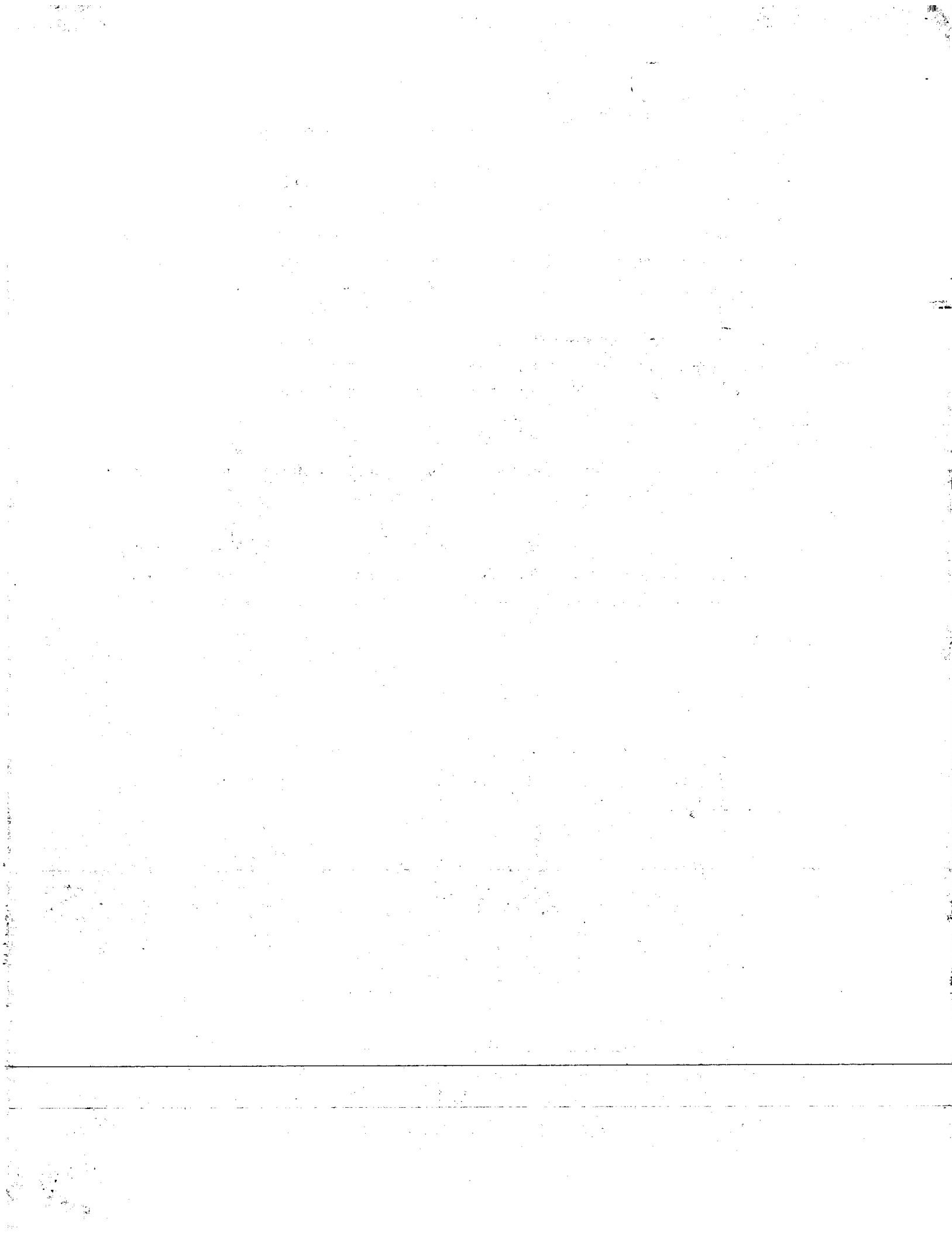


Ausgangsmaterial. Im Gegensatz hierzu wird in der vorliegenden Anmeldung die Spinnlösung, also ein ternäres Gemisch (Cellulose/Aminoxid/Wasser), über die Messung bestimmter phys. Eigenschaften geregelt. Dieses Gemisch kann auch stark gefärbt sein, sodaß in diesem Fall die Messung optischer Eigenschaften nicht zum Ziel führen würde.

Der Fachmann wird durch die Lehre von D2 nicht in naheliegenderweise auf die Übertragung der Dichtemessung auf besagtes ternäres Gemisch und die damit verbundenen Verbesserungen (schnelle, optimale Überwachung der Spinnlösungszusammensetzung und daraus resultierende verbesserte Eigenschaften der hergestellten Formkörper) hingeführt.

Folglich käme er durch Kombination beider Dokumente nur in Kenntnis der Erfindung zum vorliegenden Anmeldungsgegenstand (ex post facto Analyse).

Identische Überlegungen gelten für die beanspruchte Vorrichtung. Wenn die nötige Modifizierung der aus D1 bekannten Meßeinrichtung eine erfinderische Tätigkeit erfordert, dann gilt dies zwangsläufig auch für die entsprechende Apparatur.



- 2 -

Die Eigenschaften der nach dem Aminoxidverfahren hergestellten cellullosischen Formkörper, insbesondere die textilphysikalischen Eigenschaften der erzeugten Fasern und Filamente hängen in hohem Maße von der Zusammensetzung der Extrusionslösung ab. Zur Einhaltung optimaler Eigenschaften ist es daher erwünscht, die Zusammensetzung der Lösung zu überwachen und Schwankungen in engen Grenzen zu halten. Bei einem kontinuierlichen Verfahren wie dem vorliegenden Aminoxidverfahren ist die Prozessüberwachung für eine wirtschaftliche Fahrweise von Bedeutung. Es ist daher wichtig, auch die Konzentrationen der wässrigen Aminoxidlösungen in den Stufen (c), (d) und (e) zu messen und die Lösungszusammensetzungen zu regeln.

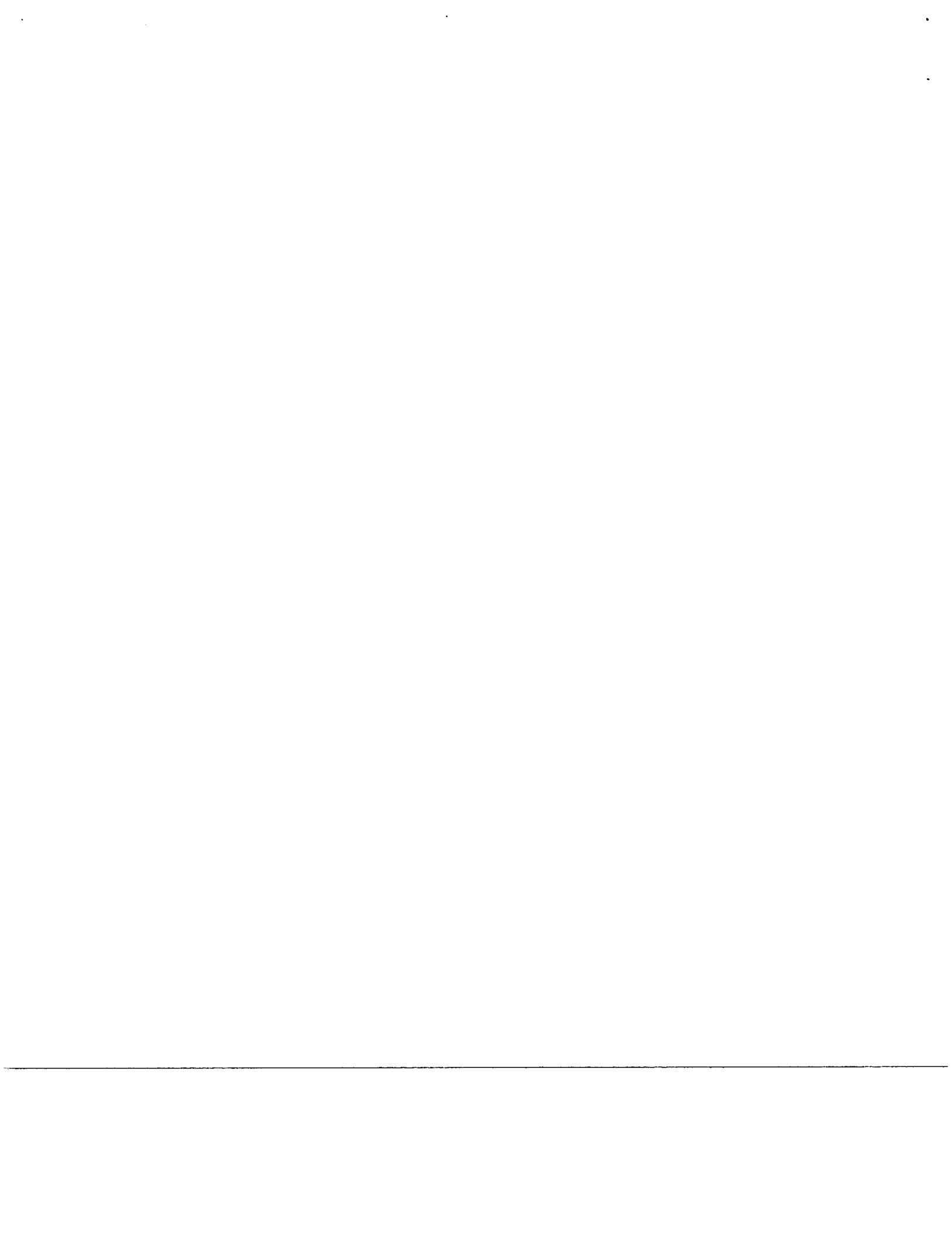
Aus WO 94/28212 ist es bekannt, von Zeit zu Zeit eine Probe der dem Extrusionsapparat zufließenden Spinnlösung zu entnehmen und ihren Brechungsindex zu messen. Dieser soll bei 60°C in dem Bereich von 1,489 bis 1,491 liegen, damit Extrusionsprodukte mit zufriedenstellenden Eigenschaften erhalten werden. Es ist ferner bekannt, den Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösungen innerhalb bestimmter Grenzen zu halten. So soll der Brechungsindex der wässrigen Aminoxidlösung für das Fällbad bei 60°C zwischen 1,3644 und 1,3708 liegen, während für die konzentrierte Aminoxidlösung für die Bildung der ZellstoffSuspension der Brechungsindex in dem Bereich von 1,4620 bis 1,4628 liegen kann, ohne daß Dosierorgane betätigt oder die Verdampferbedingungen verändert werden müssen. Die Überwachung des Brechungsindex der Lösung in einem mehr oder weniger breiten Bereich erlaubt keine exakte Regelung der Zusammensetzung der Lösung. Außerdem versagt dieses Verfahren bei Lösungen mit starker Lichtabsorption und/oder -streuung.

Der vorliegenden Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von cellullosischen Formkörpern nach dem Aminoxidverfahren zu schaffen, bei dem die Zusammensetzung der Spinnlösung genau überwacht werden kann. Die Regelung der Zusammensetzung soll genauer erfolgen als dies aufgrund eines Brechungs-



2 a

Die EP 0 254 803 offenbart ein Verfahren zur Herstellung einer wässrigen, reinen N-Methylmorpholin-N-Oxid-Lösung durch Umsetzung von Methylmorpholin mit einem wässrigen Wasserstoffperoxid, wobei man Mischungen von Methylmorpholin mit Wasser destilliert, das Methylmorpholin-Wasser-Azeotrop bei Temperaturen von 60° bis 100 °C mit einer wässrigen Wasserstoffperoxidlösung umsetzt und die Reaktionslösung anschließend auf den gewünschten Gehalt N-Methylmorpholin-N-Oxid auf konzentriert. Die Konzentration des so erhaltenen Entproduktes kann mit Hilfe des Brechungsindeks oder einer Dichtenmessung überwacht werden, wobei das Endprodukt nur leicht gelblich gefärbt ist und als Verunreinigungen kaum noch nachzuweisende Mengen an Peroxid, Methylmorpholin und Carboxylgruppen enthalten kann.



Neue Ansprüche

1. Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung (en) bei der Herstellung von cellulosischen Formkörpern, bei dem man
 - (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt,
 - (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloselösung bildet,
 - (c) die Celluloselösung durch einen Luftspalt in ein Fällbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert,
 - (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewachsen wird, und
 - (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und / oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eigenschaft der Lösungen gemessen und aufgrund des messwertes die Zusammensetzung der Lösungen geregelt wird, dadurch gekennzeichnet, daß man wenigstens eine Eigenschaft der genannten Lösungen misst und die Abweichung (en) des Messwertes bzw. der Messwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung (en) dieser Lösung (en) benutzt, wobei die Eigenschaft der Lösung unter der Dielektrizitätskonstanten, der induktiven Leitfähigkeit, der Mikrowellenabsorption, der Dichte, dem Wassergehalt und der Ultraschallgeschwindigkeit auswählt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man die Temperatur der Lösung bei oder kurz vor oder nach der

Messung der Eigenschaft mißt und den Meßwert der Eigenschaft aufgrund der Meßtemperatur kompensiert.

3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß man die Eigenschaft in-line mißt.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Dosierung der Komponenten in Stufe (a), (c) oder (d) eingreift.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Regelung der Lösungszusammensetzung in die Betriebsbedingungen der Stufe (b) und/oder (e) eingreift.

6. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 5, mit

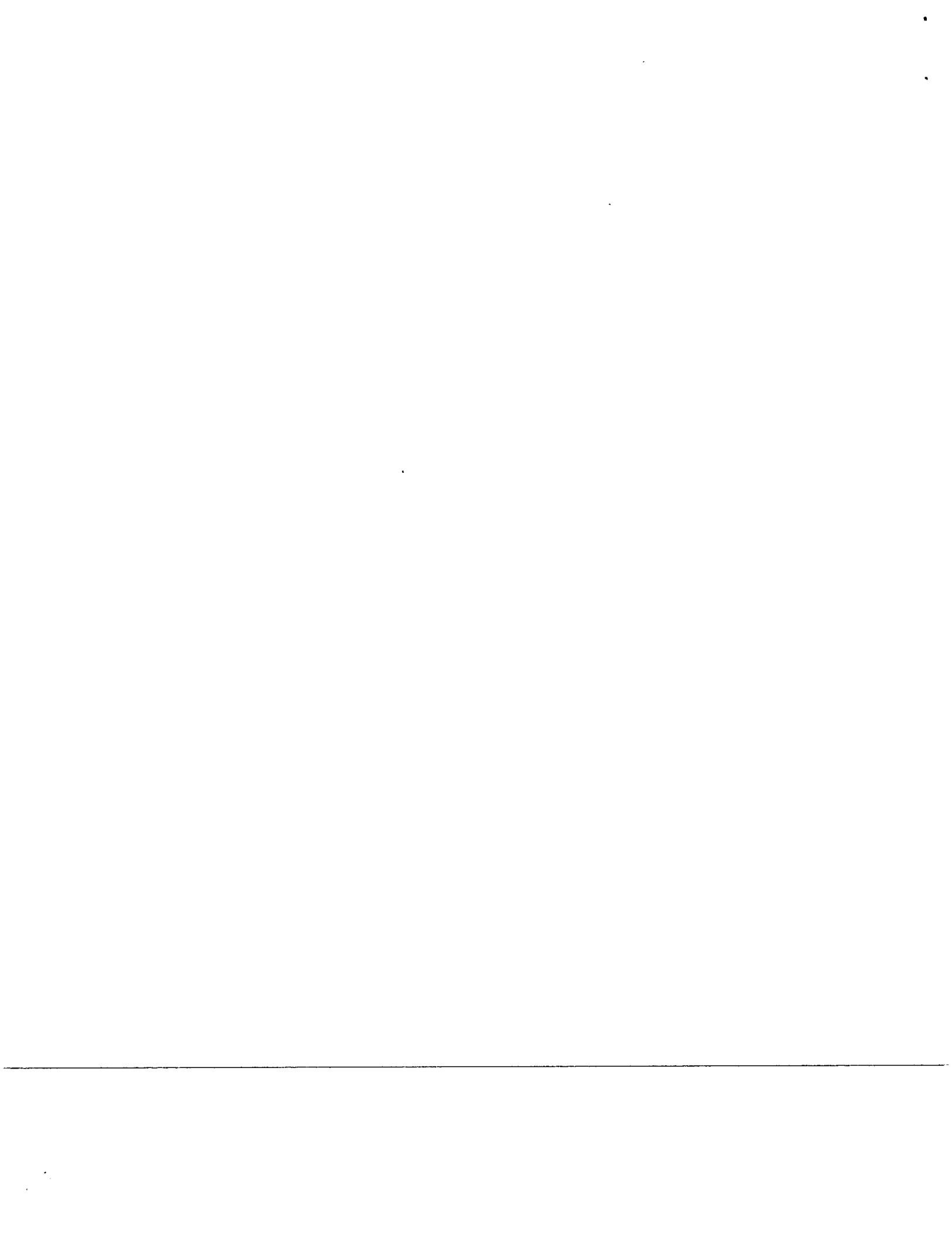
einem mit Dosierorganen ($1^a, 1^b$) bestückten Anmaischeapparat (2), einer an den Anmaischeapparat (2) angeschlossenen Löse- und Eindampfeinrichtung (3),

einer an die Löse- und Eindampfeinrichtung (3) über eine Leitung (8) angeschlossenen Extrusionseinrichtung (4) mit einem nachgeschalteten Fällbad (5),

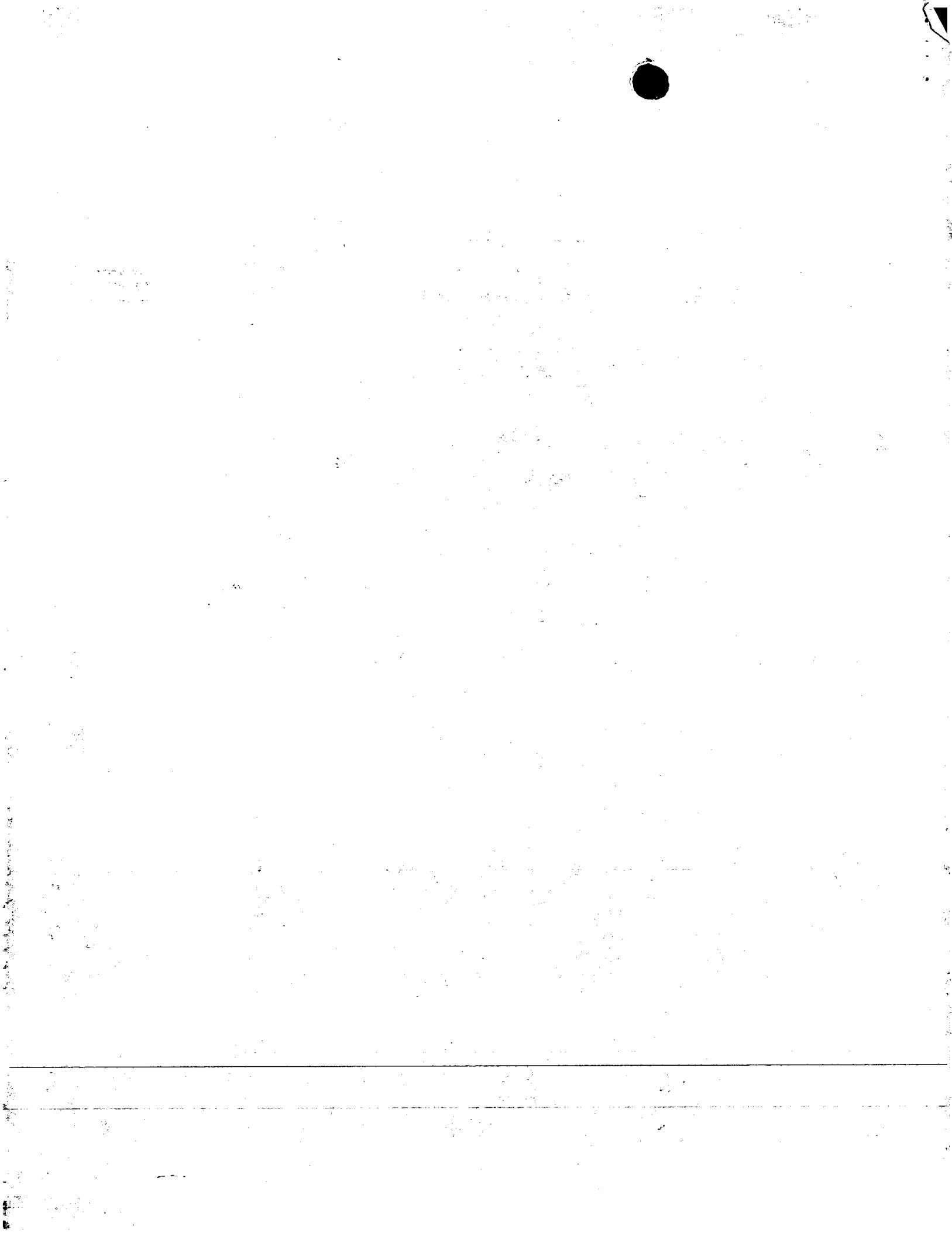
wenigstens einem Waschbad, das eine verdünnte wässrige Aminoxidlösung enthält, und

Einrichtungen zur Messung einer Eigenschaft der Lösung(en) zwecks Überwachung ihrer Zusammensetzung,

dadurch gekennzeichnet, daß in der Leitung (8,19,24) oder einem Behälter, die bzw. der die zu überwachende Lösung enthält, ein Gerät (9,21,11) zur Messung einer nicht-optischen Eigenschaft der Lösung angeordnet ist, und daß das Meßgerät zusammen mit vorgeschalteten Dosierorganen ($1^a, 1^b$; 17) oder Eindampfeinrichtungen (3;20) Regelkreise (13,14,15; 18; 23) für die Regelung der Lösungszusammensetzung bildet.



7. Vorrichtung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß das Meßgerät (9, 11, 21) ein Gerät zur Messung der Lösungstemperatur und eine Temperaturkompensation des Meßwerts des Geräts umfaßt.



(12) NACH DEM VERTRÄG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
12. April 2001 (12.04.2001)

PCT

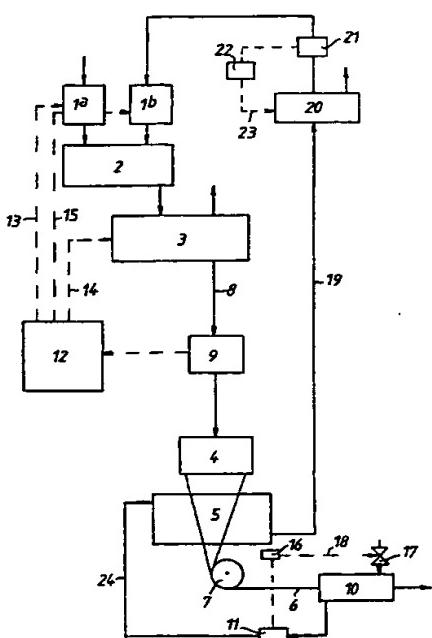
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/25512 A3

- | | | | |
|---|---------------------------------|---|---|
| (51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : | D01F 2/00, | (71) Anmelder (<i>für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US</i>): ALCERU SCHWARZA GMBH [DE/DE] ; Breitscheidstr. 148, 07407 Rudolstadt (DE). | |
| C08J 5/18, C08L 1/02 // 1:02 | | | |
| (21) Internationales Aktenzeichen: | PCT/DE00/03409 | (72) Erfinder; und | |
| (22) Internationales Anmeldedatum: | 29. September 2000 (29.09.2000) | (75) Erfinder/Anmelder (<i>nur für US</i>): NIEMZ, Frank-Günther [DE/DE] ; An der Brücke 19, 07407 Rudolstadt (DE). MEYER, Wilhelm [DE/DE] ; Unerpreilipp, Ortsstrasse 1, 07407 Rudolstadt (DE). MAINZER-ALTHOF, Tanja [DE/DE] ; Stadtschreiberei 10, 63571 Gelnhausen (DE). | |
| (25) Einreichungssprache: | Deutsch | | |
| (26) Veröffentlichungssprache: | Deutsch | (74) Anwalt: BRANDENBURG, Thomas ; Frankfurter Str. 68, 53773 Hennef (DE). | |
| (30) Angaben zur Priorität: | | (81) Bestimmungsstaaten (<i>national</i>): AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, | |
| 199 47 908.9 | 6. Oktober 1999 (06.10.1999) | DE | IL, JP, KR, LV, LT, MT, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR, UK. |
| 199 49 727.3 | 15. Oktober 1999 (15.10.1999) | DE | |

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR REGULATING THE COMPOSITION OF SOLUTION(S)

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR REGELUNG DER ZUSAMMENSETZUNG VON LÖSUNG(EN)



(57) Abstract: A method for regulating the composition of a solution(s) in the production of cellulosic mouldings comprises (a) mixing cellulose and a water containing amine oxide to form a suspension, (b) forming a cellulose solution from the suspension by evaporating water, (c) extruding the cellulose solution through an air gap in a precipitation bath containing an aqueous amine oxide solution, where it coagulates into the moulded shape, (d) passing the moulding through an aqueous wash solution, in which the residual amine oxide is washed out of the moulding and (e) recycling the aqueous amine oxide solutions from stages (c) and/or (d) to stage (a) after concentration. A property of the solutions is measured and on the basis of the measured value the composition of the solutions is controlled, whereby a non-optical property or a physical behaviour of at least one of the said solutions is measured and the deviation(s) of the measured value(s) from a preset value used for control of the composition(s) of the said solution(s). The inventive method allows a precise monitoring of the composition of the extruded solution.

(57) Zusammenfassung: Verfahren zur Regelung der Zusammensetzung von Lösung(en) bei der Herstellung von cellulosischen Formkörpern, bei dem man (a) Zellstoff und ein wasserhaltiges Aminoxid unter Bildung einer Suspension mischt, (b) aus der Suspension unter Wasserverdampfung eine Celluloseslösung bildet, (c) die Celluloseslösung durch einen Luftspalt in ein Fäßbad extrudiert, das eine wässrige Aminoxidlösung enthält, und dort zu Formkörpern koaguliert, (d) die Formkörper durch eine wässrige Waschlösung leitet, in der restliches Aminoxid aus den Formkörpern ausgewaschen wird, und (e) wässrige Aminoxidlösungen aus den Stufen (c) und/oder (d) nach Konzentrierung in die Stufe (a) zurückführt, wobei eine Eingenschaft der Lösungen gemessen und aufgrund des

WO 01/25512 A3

Messwertes die Zusammensetzung der Lösungen geregelt wird, dadurch gekennzeichnet, dass man eine nicht-optische Eigenschaft oder ein physikalisches Verhalten wenigstens einer der genannten Lösungen misst und die Abweichung(en) des Messwertes bzw. der Messwerte von einem vorgegebenen Sollwert zur Regelung der Zusammensetzung(en) dieser Lösung(en) benutzt. Das Verfahren erlaubt eine genaue Überwachung der Zusammensetzung der Extrusionslösung.



IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU,
LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT,
RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

- (84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eura-
sisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI,
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen

Recherchenberichts:

30. August 2001

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 00/03409

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 D01F2/00 C08J5/18 C08L1/02 //C08L1:02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 D01F C08J C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 94 28212 A (COURTAULDS FIBRES HOLDINGS LTD) 8 December 1994 (1994-12-08) cited in the application the whole document ---	1-8
Y	EP 0 254 803 A (HUELS CHEMISCHE WERKE AG) 3 February 1988 (1988-02-03) page 2, column 2, line 43 - line 47; claims ---	1-8
Y	GB 2 217 848 A (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC) 1 November 1989 (1989-11-01) the whole document ---	3,8

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

7 February 2001

Date of mailing of the international search report

19/02/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Tarrida Torrell, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 00/03409

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)			Publication date
WO 9428212	A 08-12-1994	US AT AT AU AU BR CA CN CZ DE DE EP ES FI HU JP PL SK TR US	5354524 A 1550 U 169969 T 678472 B 6727094 A 9406287 A 2163259 A 1124506 A 9503113 A 69412606 D 69412606 T 0700458 A 2121206 T 955655 A 73033 A 8510511 T 311716 A 148695 A 28380 A 5507983 A	A U T B A A A A A D T A T A A A A A A A	11-10-1994 25-07-1997 15-09-1998 29-05-1997 20-12-1994 02-01-1996 08-12-1994 12-06-1996 13-03-1996 24-09-1998 11-02-1999 13-03-1996 16-11-1998 23-11-1995 28-06-1996 05-11-1996 04-03-1996 05-02-1997 30-05-1996 16-04-1996
EP 0254803	A 03-02-1988	DE CA FI JP NO SU US	3618352 A 1279644 A 872367 A 62292775 A 872252 A, B, 1456011 A 4748241 A	A A A A A, B, A A	03-12-1987 29-01-1991 01-12-1987 19-12-1987 01-12-1987 30-01-1989 31-05-1988
GB 2217848	A 01-11-1989	NONE			

INTERNATIONALES RECHERCHENBERICHT

In. Aktenzeichen
PCT/DE 00/03409A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 D01F2/00 C08J5/18 C08L1/02 //C08L1:02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 D01F C08J C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	WO 94 28212 A (COURTAULDS FIBRES HOLDINGS LTD) 8. Dezember 1994 (1994-12-08) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-8
Y	EP 0 254 803 A (HUELS CHEMISCHE WERKE AG) 3. Februar 1988 (1988-02-03) Seite 2, Spalte 2, Zeile 43 - Zeile 47; Ansprüche	1-8
Y	GB 2 217 848 A (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC) 1. November 1989 (1989-11-01) das ganze Dokument	3,8

 Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmelde datum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Aussstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmelde datum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmelde datum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundliegenden Prinzips oder der ihr zugrundliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

& Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

7. Februar 2001

19/02/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Tarrida Torrell, J

INTERNATIONALES RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

 Ir... als Aktenzeichen
PCT/DE 00/03409

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 9428212 A	08-12-1994	US	5354524 A	11-10-1994
		AT	1550 U	25-07-1997
		AT	169969 T	15-09-1998
		AU	678472 B	29-05-1997
		AU	6727094 A	20-12-1994
		BR	9406287 A	02-01-1996
		CA	2163259 A	08-12-1994
		CN	1124506 A	12-06-1996
		CZ	9503113 A	13-03-1996
		DE	69412606 D	24-09-1998
		DE	69412606 T	11-02-1999
		EP	0700458 A	13-03-1996
		ES	2121206 T	16-11-1998
		FI	955655 A	23-11-1995
		HU	73033 A	28-06-1996
		JP	8510511 T	05-11-1996
		PL	311716 A	04-03-1996
		SK	148695 A	05-02-1997
		TR	28380 A	30-05-1996
		US	5507983 A	16-04-1996
EP 0254803 A	03-02-1988	DE	3618352 A	03-12-1987
		CA	1279644 A	29-01-1991
		FI	872367 A	01-12-1987
		JP	62292775 A	19-12-1987
		NO	872252 A, B,	01-12-1987
		SU	1456011 A	30-01-1989
		US	4748241 A	31-05-1988
GB 2217848 A	01-11-1989	KEINE		

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/03409

A. KLASSEFIZIERUNG DES ANMELDUNGS GEGENSTANDES
IPK 7 D01F2/00 C08J5/18 C08L1/02 //C08L1.02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 D01F C08J C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ^a	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	WO 94 28212 A (COURTAULDS FIBRES HOLDINGS LTD) 8. Dezember 1994 (1994-12-08) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ----	1-8
Y	EP 0 254 803 A (HUELS CHEMISCHE WERKE AG) 3. Februar 1988 (1988-02-03) Seite 2, Spalte 2, Zeile 43 - Zeile 47; Ansprüche ----	1-8
Y	GB 2 217 848 A (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC) 1. November 1989 (1989-11-01) das ganze Dokument -----	3,8

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- ^b Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldeatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldeatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldeatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

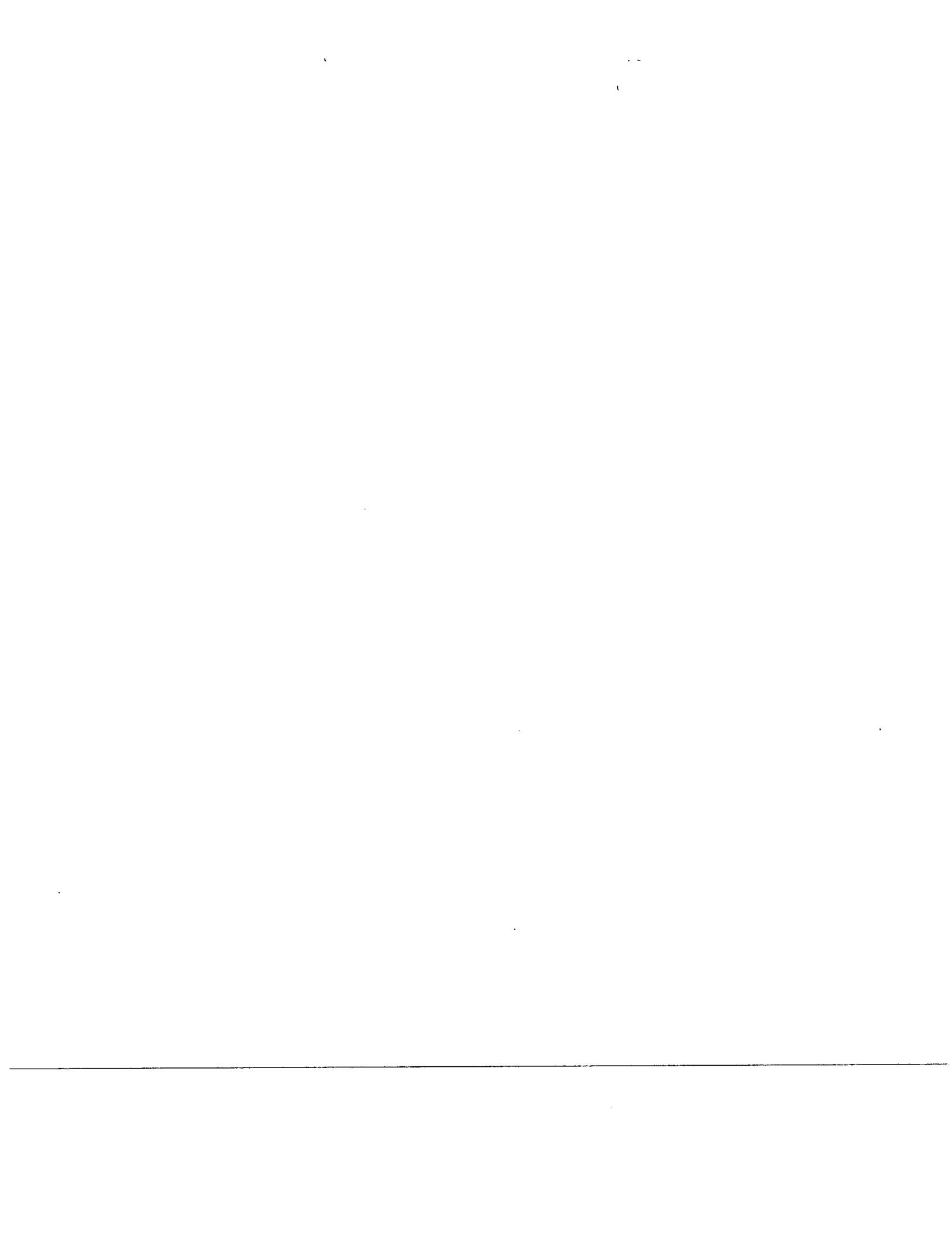
7. Februar 2001

19/02/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Tarrida Torrell, J



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 00/03409

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9428212	A	08-12-1994	US 5354524 A AT 1550 U AT 169969 T AU 678472 B AU 6727094 A BR 9406287 A CA 2163259 A CN 1124506 A CZ 9503113 A DE 69412606 D DE 69412606 T EP 0700458 A ES 2121206 T FI 955655 A HU 73033 A JP 8510511 T PL 311716 A SK 148695 A TR 28380 A US 5507983 A	11-10-1994 25-07-1997 15-09-1998 29-05-1997 20-12-1994 02-01-1996 08-12-1994 12-06-1996 13-03-1996 24-09-1998 11-02-1999 13-03-1996 16-11-1998 23-11-1995 28-06-1996 05-11-1996 04-03-1996 05-02-1997 30-05-1996 16-04-1996
EP 0254803	A	03-02-1988	DE 3618352 A CA 1279644 A FI 872367 A JP 62292775 A NO 872252 A, B, SU 1456011 A US 4748241 A	03-12-1987 29-01-1991 01-12-1987 19-12-1987 01-12-1987 30-01-1989 31-05-1988
GB 2217848	A	01-11-1989	NONE	

